

**UNIVERSIDAD COMPLUTENSE DE MADRID**  
**FACULTAD DE CIENCIAS QUÍMICAS**



**TESIS DOCTORAL**

**Aplicaciones de la espectroscopía gamma de bajas energías  
( $< 400$  KeV) al análisis por activación neutrónica con  
detectores de Ge(Li)**

MEMORIA PARA OPTAR AL GRADO DE DOCTOR  
PRESENTADA POR

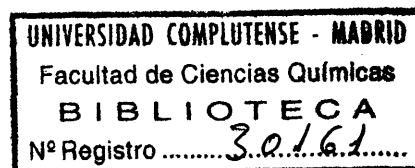
**María del Carmen Clemente Jul**

**Madrid, 2015**

**APLICACIONES DE LA ESPECTROMETRIA GAMMA  
DE BAJAS ENERGIAS (< 400 KeV)  
AL ANALISIS POR ACTIVACION NEUTRONICA  
CON DETECTORES DE Ge (Li)**

**POR**

**MARIA DEL CARMEN CLEMENTE JUL**



## **1. INTRODUCCION**

### 1.1. Antecedentes

Desde hace unos años el análisis por activación neutrónica se ha decantado hacia el empleo de técnicas instrumentales y análisis no destructivos. Muchos son los factores que han contribuido al cambio de rumbo de una técnica cuyos orígenes estuvieron totalmente enmarcados por el ataque y destrucción de las muestras seguido de separaciones radioquímicas, siendo la medida de la actividad una etapa final muy simple en la que culminaba todo un proceso predominantemente químico. Uno de los factores fundamentales en este cambio, ha sido el espectacular desarrollo de los detectores y de los equipos electrónicos de medida de la radiactividad, en especial los detectores de semiconductores de Ge(Li), que han hecho posible la técnica de la espectrometría gamma de alta resolución.

Hoy en día la técnica de la espectrometría gamma de alta resolución con detectores de Ge(Li), se emplea universalmente para el análisis por activación no destructivo de numerosos tipos de muestras, dado el elevado poder de resolución de este tipo de detectores, que hace posible la identificación y medida cuantitativa de mezclas de diversos radionucleidos presentes en la muestra irradiada.

Por supuesto que los espectros obtenidos con este tipo de detectores son muy complejos, y el número de datos -- tan elevado, ya que se utilizan analizadores de 2000 y -- 4000 canales, que hace necesario un tratamiento de datos -- por cálculo electrónico mediante computadoras, no ya porque se trate de expresiones complejas y difíciles, sino por la abundancia de datos y la tediosidad de su cálculo.

Sin embargo, cuando se emplean detectores de Ge(Li) -- convencionales de tipo coaxial o trapezoidal es muy difícil -- poder utilizar la zona del espectro gamma de bajas -- energías para el análisis por activación, debido a una serie de factores que se dan simultáneamente, con este tipo de detectores, en la región por debajo de 400 KeV:

- a) Los detectores de Ge(Li) convencionales presentan baja resolución y sensibilidad para la zona de bajas energías por debajo de 100-120 KeV.
- b) Aunque por encima de 100-120 KeV, su resolución es buena, esta región del espectro gamma presenta tal cantidad de picos, para muestras moderadamente complejas, -- que muchos de ellos aparecen superpuestos, enmascarando los de mayor intensidad a los restantes.
- c) Además en la zona de energías entre 100 y 400 KeV del --

espectro, aparece un gran número de impulsos, debidos al efecto Compton de fotones de energías más altas, - lo que reduce la sensibilidad potencial de este tipo de detectores, en esta zona del espectro.

El desarrollo de detectores de Ge(Li) de tipo plano, consistentes en un disco de germanio puro compensado con litio hasta unos pocos milímetros de profundidad (de 5 a 7), hace que la espectrometría gamma de la zona de bajas energías se vuelva particularmente atractiva debida a dos características especiales de este tipo de detectores.

Por un lado su resolución es extraordinariamente baja, incluso comparada con la de detectores convencionales de Ge(Li). Aunque la resolución depende del diámetro del detector, es normal obtener resoluciones tan buenas como 160 eV a 5.9 KeV y 460 eV para el pico de 122.1 KeV del - Co-57.

Por otro lado, la eficiencia del detector es muy baja para fotones de altas energías, lo que si bien puede - significar un inconveniente para un espectro gamma total, es una ventaja para explorar la región de bajas energías del espectro, ya que decrece considerablemente, el número de cuentas en esta región debida a efectos Compton, aumentando la sensibilidad de detección correspondiente.

Ambos efectos, hacen posible un incremento cualitativo y cuantitativo de las posibilidades de la espectrometría gamma de alta resolución en las regiones de baja energía - del espectro, mediante este tipo de detectores, con geometría plana, que precisamente reciben el nombre genérico de LEPS, anagrama de su nombre inglés "Low Energy Photon Spec<sub>1</sub>tometer".

La aplicación de este tipo de detectores, a la región de bajas energías del espectro gamma, que previamente sólo podía ser estudiada con contadores de gas en régimen proporcional, ha significado una revolución comparable a la - que la aparición de los detectores de Ge(Li), significó en relación con los detectores de NaI (Tl) en la región de - altas energías de los espectros gamma.

Todas estas características de los detectores LEPS, - hacen que su aplicación al análisis por activación, sea altamente sugestiva por los siguientes hechos:

- a) Revelan espectros que no es posible obtener con cualquier otro tipo de detectores, realizando asimismo una separación entre picos de energía próxima, inaccesible para ningún otro detector gamma.
- b) Al tener un volumen pequeño y en consecuencia poco efi-

ciencia para los rayos gamma de alta energía, el fondo debido a la dispersión de Compton es muy bajo, lo que aumenta la sensibilidad analítica.

c) Los detectores LEPS tienen eficiencias relativamente altas para fotones de energías por debajo de 200 KeV, varias decenas de veces superior a la de los detectores de Si(Li).

d) En adición muchos isótopos, productos de activación, presentan gran abundancia de fotones en la región del espectro gamma comprendida entre 100 y 200 KeV, que es la óptima para este tipo de detectores tanto en resolución como en eficiencia.

El sistema de espectrometría gamma de alta resolución para bajas energías consiste en un detector de Ge(Li) plano, un preamplificador sensible a la carga, un criostato y un dewar, así como la cadena electrónica, con la correspondiente fuente de alimentación, amplificador, convertidor analógico-digital y analizador multicanal, y su precio es del mismo orden que el de un equipo convencional de espectrometría gamma de alta resolución.

A pesar de las posibilidades teóricas, que la aplicación de este tipo de detectores presenta en análisis por



activación neutrónica no destructivo, mediante la exploración de la región del espectro gamma de bajas energías, - un estudio bibliográfico de la literatura disponible sobre el tema nos ha demostrado que estas aplicaciones son muy escasas y esporádicas.

## 1.2. Estudio bibliográfico

Los primeros en estudiar la posibilidad de aplicar la zona de bajas energías del espectro gamma al análisis por activación fueron Shemberg y colaboradores en 1967 (1), realizando la determinación de trazas de bromo en muestras conteniendo gran número de elementos interferentes en especial sodio, para lo que utilizaron los rayos X emitidos durante la desintegración radiactiva de los nucleidos  $\text{Br-80}$  y  $\text{Br-80}^m$ , producidos por la activación de las muestras con neutrones térmicos en un reactor nuclear. Las medidas de los rayos X las realizaron mediante un contador proporcional, que aunque presenta una baja resolución, es suficiente para la determinación de trazas de bromo en presencia de grandes cantidades de sodio.

Este estudio fué continuado por Pillay (2) que investigó sobre la posibilidad de utilizar dos contadores proporcionales para la medida de rayos X de energías comprendidas entre 5 y 25 KeV y un detector de centelleo sólido tipo NaI (Tl) para medidas de rayos X entre 20 y 90 KeV.

Con estos detectores sólo se pueden resolver los rayos X de elementos cuyos números atómicos difieran en más de 4 unidades.

Peisach basándose en los estudios de Pillay aplicó la espectrometría de rayos X mediante detectores de NaI(Tl) combinada con activación neutrónica para una determinación rápida de bromo en muestras biológicas (3)

Las limitaciones causadas por el bajo poder de resolución de los detectores proporcionales y de los detectores de centelleo tipo NaI (Tl), se subsanaron con la aparición de los detectores de semiconductores.

Es difícil situar exactamente, cuando se utilizaron por primera vez los semiconductores como detectores de radiación de baja energía existiendo una amplia información bibliográfica, sobre el desarrollo y evolución de las características y procesos de fabricación de los detectores compensados con litio (4, 5, 6, 7, 8, 9). En un principio, se llegó a pensar que estos detectores sólo tendrían una utilidad relativa en espectrometría gamma para altas energías. Mann, Halesti y Janarek (10) obtuvieron un espectro gamma de Cs-137 con un detector de silicio compensado con litio en el que la altura del pico de absorción total era aproximadamente un 2% de la altu-

ra del borde Compton. Sin embargo la anchura del fotopico lograda fué unas cinco veces mejor que la obtenida con detectores de NaI (Tl). Por lo tanto con el desarrollo de materiales semiconductores de mayor número atómico como es el caso del germanio, se logró una mayor eficiencia acoplada con una alta resolución.

Los primeros espectrómetros empleando detectores de semiconductores para rayos X y gamma de baja energía es tán descritos por Elad (11) en 1965 y en 1966 por Bowmann y colaboradores (12). El diseño de este tipo de detectores, se ha mejorado posteriormente, pero el mayor avance se ha producido especialmente, en relación con los equipos electrónicos asociados, donde se ha conseguido reducir la resolución para bajas energías de 700 eV a 105 eV, último valor publicado por Goulding (13).

Teniendo en cuenta las ventajas de los detectores de semiconductores sobre contadores proporcionales y detectores de centelleo utilizados en los espectrómetros de radiación X y gamma de bajas energías como son, un mayor poder de resolución y una mejor estabilidad, tanto del detectores como de los equipos electrónicos asociados, problema éste que se presenta particularmente agudo en el contador proporcional para medidas largas, Mantel y Amiel en 1972 (14) realizaron el estudio de la posible aplicación

de la espectrometría de rayos X en análisis por activación neutrónica utilizando detectores de Si(Li), con un elevado poder de resolución de 320 eV, pero que tienen una eficiencia muy baja para las radiaciones de energías superiores a 60 KeV.

En trabajos posteriores, estos mismos autores realizaron la determinación simultánea de uranio y thorio por análisis por activación neutrónica no destructiva, mediante espectrometría de rayos X con detectores de Si(Li) (15), así como una determinación cuantitativa de los elementos constituyentes de una serie de minerales también mediante espectrometría de rayos X de alta resolución con detectores de Si(Li) (16).

Siguiendo esta misma línea, Lavi (17) determinó trazas de selenio, efectuando la medida con un detector de Si(Li) de los rayos X emitidos durante la desintegración radiactiva de los productos de activación neutrónica, -- Se-75 y Se-77<sup>m</sup>, en presencia de telurio cuyos productos de activación, Te-131 y I-131, presentan picos en la región de energías gamma que pueden interferir con los característicos del selenio y Allen (18) utilizó un detector de Si(Li) para la determinación de cobre en matrices complejas mediante los rayos X de la serie K del níquel, resultantes de la desintegración del Cu-64 por captura elec -

trónica.

Un estudio comparativo, de la aplicación de los rayos X y gamma de baja energía, mediante detectores de  $\text{Ge(Li)}$  en el análisis por activación neutrónica de muestras de cabello humano para 4 elementos, (bromo, cobre, plata y cobalto) fué realizado por Meinke y colaboradores (19).

Más recientemente Friedman y colaboradores (20) para aumentar la sensibilidad en la determinación de trazas de mercurio han utilizado un detector de  $\text{Ge(Li)}$ , especial para fotones de bajas energías. Seleccionaron para los cálculos las líneas características  $K\alpha$  y  $K\beta$  del oro producidas cuando el  $\text{Hg-197}$  se desintegra por captura electrónica y el rayo gamma de baja energía de 77.3 KeV del  $\text{Hg-197}$ .

Recientemente se ha utilizado un detector de  $\text{Ge(Li)}$  especial para la zona de bajas energías del espectro gamma para la determinación de U-238 en aerosoles (21). Con ello se ha pretendido seguir el camino de Zoller y Gordon (22) que en 1970 utilizaron un detector de  $\text{Ge(Li)}$  tipo plano para completar la identificación de 5 contaminantes atmosféricos sólidos a partir de las radiaciones gamma de energías inferiores a 200 KeV emitidas por los correspondientes nucleidos, productos de la activación mediante neutrones, aunque en este caso se había efectuado con neu

tronos epitérmicos.

### 1.3. Objeto de la investigación

La revisión bibliográfica realizada sobre las aplicaciones de la espectrometría gamma en la zona de bajas -- energías del espectro (rayos X y gamma de baja energía) -- al análisis por activación neutrónica nos ha indicado que éstas son muy escasas y esporádicas. En un principio, se han utilizado en la mayoría de los casos detectores proporcional para la medida de la actividad inducida en las muestras, limitándose a la determinación de bromo en muestras biológicas.

Aunque el desarrollo de los detectores de Ge(Li) mejoró la situación ampliándose la determinación a otros -- elementos como mercurio, uranio, etc. ..., en todos los -- casos se han realizado determinaciones aisladas, echándose en falta la existencia de un estudio sistemático y amplio de las posibilidades que ofrece la espectrometría -- gamma de esta zona del espectro en análisis por activación, especialmente por la disponibilidad de este tipo de detectores de gran resolución y eficiencia aceptable.

El objeto de la presente investigación, es la exploración sistemática de las posibles ventajas en cuanto a --

sensibilidad y número de elementos determinables que ofrece la aplicación de la espectrometría gamma de la región de bajas energías al análisis por activación neutrónica, realizándose la comparación de los resultados obtenibles experimentalmente para toda una serie de elementos, utilizando dos tipos de detectores de semiconductores de Ge(Li): un detector convencional de tipo coaxial y otro de tipo plano (LEPS) especial para fotones de bajas energías, poniendo de manifiesto, las ventajas e inconvenientes del empleo de cada uno de ellos en la determinación por activación neutrónica de una serie de elementos.

Las etapas desarrolladas en la investigación realizada que se exponen en la presente memoria han sido las siguientes:

Después de un estudio de los fundamentos teóricos de los métodos y técnicas utilizados en la misma, como el análisis por activación neutrónica y la espectrometría gamma de alta resolución, se ha realizado una revisión del mecanismo de producción de rayos X en los productos de las reacciones nucleares  $(n, \gamma)$ , originados en la irradiación de los elementos químicos con los neutrones de un reactor nuclear.

A continuación se ha procedido a un estudio sistemático de las características nucleares de los productos de activación con neutrones térmicos. Se seleccionaron aquellos radionucleidos que poseen un período de semidesintegración adecuado, mayor de varios días y que sean emisores de rayos X y fotones gamma, en la región de bajas energías del espectro hasta 400 KeV, eliminándose los restantes. Asimismo se han suprimido aquellos radionucleidos, productos de activación neutrónica, cuya posibilidad de producción era muy escasa, debida a alguna de las circunstancias desfavorables que repercuten en la activación, tales como baja sección eficaz de activación, o baja abundancia isotópica del nucleido padre, etc.

Con los elementos seleccionados en el estudio previo se han preparado una serie de patrones de concentración conocida que se han irradiado con neutrones en los dispositivos experimentales del reactor nuclear JEN-1.

Los espectros gamma de los productos de activación neutrónica de los elementos seleccionados se han tomado con dos tipos de detectores de Ge(Li), convencional y -- especial para bajas energías respectivamente, de los que previamente se han determinado sus características: poder de resolución y eficiencia.



Los datos de los espectros gamma han sido tratados - por cálculo electrónico para obtener las energías y actividades de los fotones emitidos por cada radionucleido me diante una calculadora digital de alta velocidad.

Con los datos de las energías y actividades de los - rayos X y fotones gamma de los espectros de ambos tipos - de detectores, se ha realizado una comparación experimental de las sensibilidades analíticas obtenibles en ambos detectores. Ahora bien, como la problemática de la aplicaci ón de los rayos X y de los fotones gamma de baja energía es completamente distinta, el estudio se ha dividido en dos capítulos diferentes, para ambos tipos de radiaci ón.

En el estudio de la posible aplicación de los rayos X al análisis por activación, se han realizado una serie de experimentos, para evaluar las posibles interferencias y errores ocasionados por la presencia de emisores radiacti vos en la producción del rayo X del radionucleido de - interés o de otros nucleidos estables, realizándose un estu dio cuantitativo de la magnitud de las posibles interfere ncias en función de diversos parámetros.

Asimismo se han estudiado de forma experimental, la existencia de errores producidos por la distinta obsor -

ción de los rayos X por muestras de diferente densidad, determinándose la magnitud de la absorción en función de la energía de la radiación.

Finalmente se ha realizado una aplicación práctica de los conocimientos desarrollados, comparando los resultados del análisis por activación no destructivo de rocas patrón del U.S. Geological Survey, empleando espectrometría gamma de bajas energías y convencional, respectivamente.

## **2. METODOS Y TECNICAS**

## 2.1. Análisis por activación neutrónica

El análisis por activación neutrónica se basa en la identificación y medida de las radiaciones específicas - emitidas por los radionucleidos producidos por reacciones nucleares empleando neutrones como partículas bombardeantes.

Las principales características de esta técnica analítica nuclear es en primer lugar su especificidad, ya - que la medida se efectúa sobre un radionucleido identificado por la energía de sus radiaciones y por su período de semidesintegración. Por otra parte, el elemento se - puede determinar cualquiera que sea la naturaleza de su combinación química, ya que es el núcleo del mismo el que interviene en la reacción nuclear producida por los neutrones. Otra característica del método es su alta sensibilidad que será tanto mayor cuanto mayor sea la actividad - producida del elemento. Esta actividad es directamente - proporcional al flujo neutrónico; por lo tanto las fuentes de neutrones más interesantes para la determinación de trazas de elementos son aquéllas que originan un flujo muy alto de neutrones como son los reactores nucleares.

La mayoría de los elementos con  $Z > 8$  se pueden determinar por activación neutrónica.

### 2.1.1. Ecuación general de activación

La actividad por unidad de peso producida en un elemento de masa atómica M de una muestra irradiada se calcula mediante la ecuación general de activación:

$$A = \frac{6.02 \cdot 10^{23} \cdot W \cdot \phi \cdot \theta \cdot \sigma (1 - \exp(-t \ln 2 / T_{1/2}))}{M} \quad |1|$$

donde

$6.02 \cdot 10^{23}$  es el número de Avogadro.

W es el peso del elemento existente en la muestra irradiada, expresado en gramos.

$\phi$  es el flujo de neutrones bombardeantes, expresado en neutrones por centímetro cuadrado por segundo.

$\theta$  es la abundancia isotópica del isótopo que sufre la reacción nuclear, expresada en tanto por uno.

$\sigma$  es la sección eficaz de activación para el isótopo considerado, expresada en barns.

$$(1 \text{ barn} = 10^{-24} \text{ cm}^2)$$

M es el peso atómico del elemento considerado.

t es el tiempo de irradiación

$T_{1/2}$  es el período de semidesintegración del radio nucleido formado.

En la ecuación [2] (23) hay dos factores especialmente importantes:

a) El producto  $\phi \cdot \sigma$ :

La sección eficaz de activación es una característica nuclear propia del isótopo bombardeado y es variable según la reacción neutrónica. Las secciones eficaces de las reacciones  $(n, \gamma)$  suelen ser del orden del barn, pero pueden llegar a alcanzar valores de varios miles de barns. Las actividades producidas serán tanto mayores cuanto mayor sea el producto  $\phi \cdot \sigma$ . Como no es posible alterar el valor de  $\sigma$ , para conseguir una sensibilidad elevada se debe aumentar el flujo neutrónico lo más posible.

b) El producto  $(1 - \exp(-t \ln \frac{2}{T_{1/2}})) \exp(-t_1 \ln \frac{2}{T_{1/2}})$  :

Este producto expresa el hecho de que la actividad es la suma de dos fenómenos, la producción de átomos radiactivos, que es una función lineal del tiempo, si el flujo es constante, y la desintegración del radionucleido que obedece a una ley exponencial (24).

( $t$  y  $T_{1/2}$  deben expresarse en las mismas unidades)

En el caso de diferentes isótopos del mismo elemento presentes en la muestra irradiada, la actividad total del elemento es la suma de las actividades debidas a cada uno de los isótopos producidos del elemento.

La actividad obtenida mediante la ecuación |1| (23) es la producida inmediatamente después del fin de la irradiación, pero entre el final de la irradiación y el momento de la media pasa un cierto tiempo  $t_1$ , por lo que en la ecuación |1| habrá que introducir un factor de corrección por desintegración radiactiva:

$$A = \frac{6.02 \cdot 10^{23} \cdot W \cdot \phi \cdot \sigma (1 - \exp(-t \ln 2 / T_{1/2})) \exp(-t_1 \ln 2 / T_{1/2})}{M}$$

A es la actividad absoluta producida de un radionuclido en una irradiación de tiempo  $t$  y media un tiempo  $t_1$  después del final de la irradiación, expresada en desintegraciones por segundo.

Cuando el tiempo de irradiación es suficientemente grande en relación con el período de semidesintegración del producto radiactivo, (aproximadamente 10 veces mayor que el período), se puede llegar a la saturación. Para elementos de período corto se puede irradiar a saturación, pero hay que tener en cuenta la desintegración y efectuar la medida lo más rápido posible, pero para radionucleidos de período largo sólo se puede irradiar una fracción de la actividad de saturación con tiempos de irradiación de duración razonable.

#### 2.1.2. Sensibilidad analítica

El peso de un elemento presente en una muestra irradiada se puede calcular a partir de la ecuación general de activación mediante la medida de la actividad  $A$  del radionucleido formado según la expresión:

$$W = \frac{A \cdot M}{6.02 \cdot 10^{23} \cdot \phi \cdot \theta \cdot \sigma \left(1 - \exp\left(-t \ln \frac{2}{T_{1/2}}\right)\right) \exp\left(-t_1 \ln \frac{2}{T_{1/2}}\right)}$$

De todos los parámetros que influyen en la sensibilidad analítica hay una serie de ellos que son



fijos porque dependen de las características nucleares del elemento analizado (sección eficaz de activación, abundancia isotópica y período de semidesintegración) y de los medios experimentales disponibles (flujo de neutrones bombardeantes), mientras que otros pueden ser escogidos por el analista como son el tiempo de irradiación de la muestra y el tiempo de desintegración. Por último, hay un factor que aunque no está presente en la ecuación general de activación, es muy importante que es la eficiencia del equipo de medida de la actividad que se ha producido.

#### 2.1.3. Métodos de análisis por activación

El análisis por activación neutrónica se puede realizar de forma absoluta o de forma relativa. En el primer caso es necesario el conocimiento de numerosos parámetros como la sección eficaz de activación que es un valor variable en función del espectro del flujo neutrónico, o el valor exacto del flujo neutrónico durante la irradiación, que puede fluctuar con el tiempo o puede estar perturbado por otras componentes, caso muy frecuente en los reactores nucleares. Por estas razones, este método de análisis está sujeto a gran incertidumbre, por lo -

que no se emplea frecuentemente.

En la mayor parte de los casos se utiliza en análisis por activación neutrónica el método relativo, en el que después de la irradiación, se comparan las actividades del elemento presente en la muestra, con la de un patrón de peso conocido del elemento a determinar que se ha irradiado conjuntamente -- con la muestra.

En las determinaciones cuantitativas, la fórmula general (25) para calcular el peso del elemento a determinar en la muestra es:

$$W_m = W_c \frac{A_m}{A_c}$$

donde

$W_m$  es el peso del elemento en la muestra.

$W_c$  es el peso del elemento en el patrón.

$A_m$  es la actividad del elemento en la muestra.

$A_c$  es la actividad del elemento en el patrón.

Después de la irradiación es necesaria la determinación de la actividad del nucleido radiactivo. Si la medida de esta actividad se realiza directamente, el análisis será no destructivo. Por el contrario, -

si la actividad está perturbada por la de otros nucleidos con períodos de semidesintegración o energías muy próximas, puede ser necesaria una separación radioquímica para aislar el radionucleido de interés sólo o con un grupo de elementos que no interfieran en la medida.

Para la medida de la actividad, los tipos de detectores más utilizados en análisis por activación neutrónica son:

- Detectores de ~~ionización~~ ionización gaseosa (contadores Geiger-Muller, contadores proporcionales, ...);
- Detectores de centelleo;
- Detectores de semiconductores.

Los detectores de ionización gaseosa se utilizan principalmente en la medida de los radioisótopos emisores  $\beta^-$  puros, como es el caso del S-35.

Los detectores de centelleo son del tipo de centelleo líquido para la medida de emisores  $\beta^-$  o de centelleo sólido para la medida de radiación gamma. Los detectores de centelleo sólido más clásicos son los cristales de yoduro sódico activados con talio. Estos detectores tienen buena eficiencia, pero pobre resolución.

Actualmente los detectores más utilizados son los semiconductores compensados con litio del tipo Ge(Li) ó Si(Li) que tienen muy buena resolución, - aunque bajas eficiencias.

Los detectores llevan acoplado una serie de - equipos electrónicos, para el tratamiento de los - impulsos eléctricos que producen, para su almacenamiento y clasificación, y para la salida de los datatos de los espectros de la energía de la radiación que consiguen obtener.

## 2.2. Espectrometría gamma de alta resolución con detectores de semiconductores

La espectrometría gamma, consiste en obtener el espectro de energías de las radiaciones gamma emitidas por los radionucleidos, mediante un detector de respuesta - proporcional a la energía del fotón incidente y un mecanismo electrónico que clasifique y registre los impulsos recibidos del detector.

En un espectrómetro de radiación gamma el elemento sensible a la radiación es el detector, cuya característica fundamental es la proporcionalidad entre la energía que los fotones gamma depositan en él y la altura de los

impulsos eléctricos que suministra como respuesta. Una cadena electrónica amplifica y clasifica estos impulsos en función de su tamaño, lo que permite conocer el número de fotones gamma de cada energía que han interaccionado con el detector. Estos datos se representan en forma de histograma (número de impulsos "versus" energía) denominado -- espectro de energía gamma o abreviadamente espectro gamma.

La espectrometría gamma ha estado asociada hasta -- hace algunos años exclusivamente a los detectores de centelleo del tipo NaI (Tl) pero la aparición de detectores de semiconductores ha revolucionado esta técnica haciendo posible la espectrometría gamma de alta resolución, dado el mayor poder de resolución de este tipo de detectores - frente a los de centelleo.

Para una correcta interpretación de los espectros - gamma obtenidos con detectores de Ge(Li) se describen en el presente epígrafe los procesos de interacción de la radiación gamma con un cristal de germanio compensado con - litio, así como las características esenciales del detector y de cada uno de los componentes de la cadena electrónica que manipula los impulsos eléctricos producidos por el detector.

### 2.2.1. Características generales de los detectores de semiconductores: Detectores compensados con litio

La utilización de detectores de semiconductores para la medida de la radiación gamma se basa en el fenómeno de producción de pares electrón-hueco al interaccionar los fotones gamma con el cristal semiconductor.

En un semiconductor, los rayos gamma pierden parte de su energía al excitar un electrón que abandona su correspondiente átomo. Este electrón queda libre para moverse dentro de la red cristalina del semiconductor. El átomo se queda en un estado excitado y con una vacante que se denomina "hueco" en su capa de valencia. Este "hueco" se puede mover de átomo en átomo dentro de la red del cristal, como un electrón positivo, bajo la influencia de un campo eléctrico aplicado exteriormente. Por consiguiente, una parte de la energía del rayo gamma se absorbe en la producción del par electrón-hueco que pueden actuar como portadores de carga. Mediante la recogida de estos portadores de carga se puede detectar el paso del fotón y en determinadas condiciones medir la energía depositada por el mismo en el cristal.

tica es mejor y la resolución mayor en el caso del detector semiconductor. Puesto que el cristal del semiconductor es bastantes estable, desaparecen la mayoría de los problemas debidos a las impurezas del gas que presentan los detectores proporcionales.

- b) Dado que el volumen efectivo de estos detectores es pequeño y la movilidad de electrones y huecos muy elevada, resulta un tiempo de colección de cargas muy corto y, por lo tanto, un poder de resolución en tiempos muy elevado, que puede llegar a ser del orden del nanosegundo. Por ejemplo, el tiempo de colección de cargas es de tres órdenes de magnitud superior en los semiconductores que en los contadores proporcionales.
- c) La alta densidad del semiconductor da lugar a una eficiencia mayor para un volumen dado del detector.
- d) Es posible obtener geometrías más útiles con este tipo de detectores.

Para que un detector de semiconductores tenga una buena linealidad y una alta resolución en tiempos,

debe poseer un volumen sensible suficiente para absorber la totalidad de la radiación incidente. Los portadores de carga han de tener una vida suficiente para facilitar la recolección total, una gran movilidad para disminuir el tiempo de recolección y - una alta resistividad para poder aplicar al detector un campo eléctrico elevado, favorable a la recolección rápida de los portadores, sin aumentar el ruido de fondo. Es difícil de conseguir que un detector - homogéneo de tipo n (cristal semiconductor con una mayoría de electrones libres como portadores de carga con los correspondientes iones positivos ligados a la red cristalina), ó de tipo p (cristal semiconductor con una mayoría de huecos libres como portadores de carga con los correspondientes iones negativos ligados a la red cristalina), cumplan las condiciones citadas anteriormente. Sólo los detectores de unión (detectores de unión difusa, de barrera de superficie o compensados con litio) tienen las características indicadas.

Los detectores de unión difusa y de barrera de superficie que presentan en sus características fundamentales diferencias pequeñas debidas únicamente a sus distintos procesos de fabricación, tienen una limitación originada por la profundidad de la zona de



carga de espacio, cuyo valor máximo en este tipo de detectores es de 1.5 mm. (28), ya que existe una gran dificultad en obtener el material semiconductor en un alto grado de pureza.

Por lo tanto, incluso el germanio de mayor resistividad, tiene una concentración de impurezas elevada. Estas impurezas son eléctricamente activas y producen un número suficientemente grande de electrones o huecos capaz de interferir la señal producida por un rayo gamma. Para conseguir un mayor grado de pureza se parte de un germanio lo más puro posible - cuyas impurezas residuales se compensen con concentraciones análogas de impurezas de tipo opuesto.

El proceso de compensación con litio es un medio por el que estas impurezas del material semiconductor llegan a ser eléctricamente inactivas. Consiste en la difusión de iones de litio en el volumen del cristal de germanio de una manera controlada. Por consiguiente, para la detección de la radiación gamma, el detector de semiconductores más adecuado es el de unión compensado con litio, que consiste en un cristal semiconductor en el que se han producido tres regiones: una región de tipo p, otra compensada i y otra de tipo n. Estas tres regiones se han creado -

mediante el arrastre o difusión de litio. Se ha escogido el litio como impureza donadora de electrones, por tener un potencial de ionización muy reducido de sólo 0.033 eV, de forma que se ioniza fácilmente con una ligera aportación de energía térmica . Al tener el litio un radio atómico pequeño, del orden de --- 0.3 Å, comparado con los espacios interatómicos de la red cristalina del germanio, los iones de litio - se difunden muy fácilmente en el germanio, lo que - permite obtener espesores apreciables de germanio - compensado. Para mantener los iones litio, en posi - ción y limitar la excitación térmica de los pares - electrón-hueco, los detectores de germanio compensado con litio han de operar permanentemente a las temperaturas del nitrógeno líquido.

Existen dos tipos de detectores de Ge(Li): detectores planos y detectores coaxiales.

Los detectores planos, tienen dos electrodos - de colección de cargas con una región sensible entre ellos que varía en profundidad de 5 a 15 mm. (28). Presentan la ventaja de poseer campos de colección muy uniformes, permitiendo el mínimo de variaciones en el tiempo de colección de los portadores de carga producidos por los rayos gamma. Esta característica es muy

importante, ya que el tiempo de formación de un impulso depende de dos factores, en primer lugar de la posición dentro del cristal donde tiene lugar la interacción y en segundo lugar de la uniformidad del campo de colección. En un trabajo de coincidencia, el tiempo de colección de cargas es muy importante por lo - que los detectores planos son ideales para trabajos - de coincidencia en bajas energías.

Los detectores coaxiales presentan la ventaja de un mayor volumen sensible y una deriva del campo, entre los electrodos, razonable. Hay un tipo de detector coaxial de forma trapezoidal que presenta grandes derivas del campo dentro de su volumen, lo que - favorece que la interacción Compton se absorba totalmente dentro del germanio, por lo que tienen una excelente relación pico/Compton. Este tipo de detector - coaxial tiene un tiempo de colección de cargas peor - que el de los detectores planos (29).

Los detectores coaxiales que se emplean habitualmente en espectrometría gamma, suelen tener un volumen sensible grande y tiempos de colección de cargas adecuados.

$$\sigma \text{ fotoel\u00e9ctrica} \propto NZ^5 E_\gamma^{-3.5} / \text{cm}$$

donde

Z es el n\u00famero at\u00f3mico del material semiconductor.

N es el n\u00famero de \u00e1tomos del semiconductor/cm<sup>3</sup>.

Por lo tanto, la probabilidad de que un fot\u00f3n se absorba por efecto fotoel\u00e9ctrico, aumenta con el n\u00famero at\u00f3mico del material semiconductor del orden de  $Z^5$  y disminuye con la energ\u00eda del fot\u00f3n.

Entre 100 KeV y 8 MeV la mayor\u00eda de los rayos gamma se absorben mediante el efecto Compton. El rayo gamma sufre una colisi\u00f3n el\u00e1stica con el \u00e1tomo, cediendo parcialmente su energ\u00eda a un electr\u00f3n. El fot\u00f3n sale rebotado y puede sufrir nuevos efectos Compton o puede ser absorbido por efectos fotoel\u00e9ctricos.

La probabilidad de que un fot\u00f3n se absorba por efecto Compton aumenta linealmente con el n\u00famero at\u00f3mico del material semiconductor y disminuye tambi\u00e9n de forma aproximada linealmente con la energ\u00eda del fot\u00f3n.

Por encima de 8 MeV el proceso de interacción que predomina es la producción de pares. La desaparición espontánea del rayo gamma crea un par electrón-positrón, cuya energía cinética es igual a la energía del fotón menos la energía equivalente a la masa en reposo del par electrón-positrón de 1.02 MeV. Los electrones de las capas de valencia de los átomos del semiconductor absorben la energía cinética del positrón. Cuando el positrón ha perdido su energía cinética, se aniquila con un electrón y convierte la energía equivalente a la masa en reposo del par electrón-positrón en dos ~~fotones~~ fotones de 0.51 MeV cada uno. Estos rayos gamma secundarios pueden escapar del semiconductor o pueden ser absorbidos por efectos fotoeléctrico o Compton.

La sección eficaz de producción de pares aumenta con el número atómico del material semiconductor del orden de  $Z^2$ .

Resumiendo todo lo expuesto anteriormente, en un cristal de germanio los fotones son absorbidos por efecto fotoeléctrico, dispersión Compton o creación de pares electrón-positrón, siendo la probabilidad de que ocurra cada uno de estos procesos función de la energía del fotón y del número atómico del material -

absorbente.

En el caso de nuestro detector, tipo LEPS, se puede ignorar la producción de pares, porque para su energía umbral de 1.02 MeV, la eficiencia del detector LEPS es muy baja. El proceso Compton tiene una alta probabilidad de producirse, pero, en general, la dispersión Compton no es útil para el análisis de energías de radiación debido a que origina una deposición incompleta y variable de energías en el detector, contribuyendo por lo tanto al fondo continuo en una amplia región de energías, lo que reduce las relaciones señal/ruido y oscurece la detección de radiaciones de energías más baja.

El principal efecto, en cuanto a su utilidad, es el efecto fotoeléctrico en el que toda la energía del fotón queda depositada en el detector obteniéndose una línea característica en el espectro gamma. En el efecto fotoeléctrico, la energía del fotón incidente se reparte en energía cinética del electrón arrancado y en energía del rayo X emitido por el átomo que ha sufrido la interacción. Puede ocurrir que el rayo X sea captado por el detector en cuyo caso la energía total cedida al detector sería la del fotón incidente, pero también el rayo X puede escapar del detector,

con lo que la energía depositada en el cristal semiconductor sería la del fotón incidente menos la del rayo X característico del germanio. Ambos procesos - que originan la aparición del fotopico y la del pico de escape se producirán con sus probabilidades correspondientes. Si el fotón incidente es de energías bajas penetrará menos en el detector y la probabilidad de escape aumentará. Hay casos en que ocurren interacciones Compton seguidas de fotoeléctricas y la radiación no escapa del detector, el efecto práctico es el mismo que si la primera interacción fuera fotoeléctrica. Este efecto aumenta con el tamaño del detector.

### 2.2.3. Instrumentación electrónica para detectores de semiconductores

En cualquiera de los tres procesos citados de interacción, la energía del rayo gamma se convierte en electrones energéticos que pierden su energía cinética para producir una cantidad de carga que es proporcional a la energía del rayo gamma absorbido. La carga producida se recoge en dos electrodos y se convierte en un impulso eléctrico mediante un preamplificador sensible a la carga. Después de una amplificación y formación del impulso mediante equipos de integración y diferenciación adecuados, los impulsos pasan a un analizador multicanal donde se registra el espectro

de altura de impulso en la pantalla de un osciloscopio.

En la fig. 2-1 se muestra el diagrama bloque de la instrumentación electrónica asociada a un detector de Ge(Li) que consta de los siguientes elementos:

a) Fuente de alimentación de alta tensión.

Los detectores de Ge(Li) no necesitan tener una fuente de alta tensión con una estabilidad tan grande como la que es necesaria para los detectores de centelleo porque los fotopícos no suelen variar de posición con los cambios de alta tensión. Sin embargo, es conveniente una alta tensión de polarización que puede producir un pequeño aumento en la eficiencia de detección originado por aquellas cargas que no han quedado bien compensadas en algunas zonas del detector y que al alcanzarse un nivel de polarización elevado se convierten en eléctricamente activas.

b) Preamplificador.

En los detectores de Ge(Li) se utilizan preamplificadores sensibles a carga eléctrica porque la



capacidad efectiva de los detectores de semiconductores varía de manera acusada con la tensión de polarización aplicada.

El preamplificador se debe conectar lo más - cerca posible del detector para que no aumente la capacidad de salida del detector.

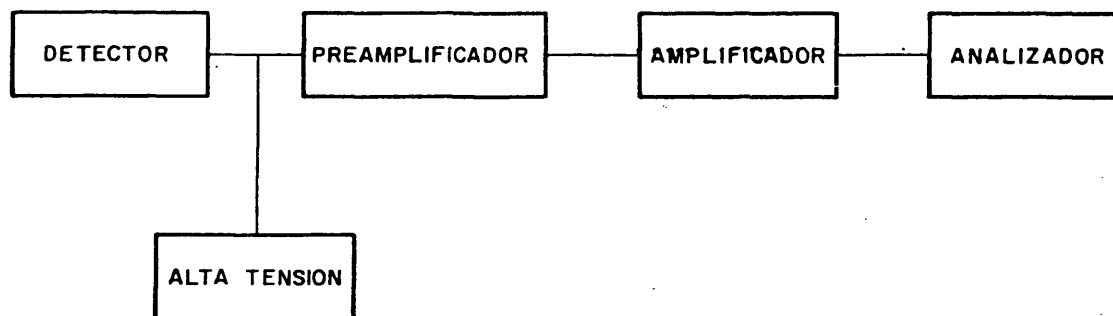


Figura 2-1. Diagrama bloque de la instrumentación electrónica asociada a un detector de Ge(Li)

c) Amplificador.

Un amplificador lineal asociado a un detector de Ge(Li) debe tener unas condiciones de diseño tales como un intervalo de ganancia amplio, nivel de ruido muy bajo, alta estabilidad con las variaciones de temperatura, linealidad integral superior al  $-0.1\%$  de 0 a  $\pm 10V$  y constantes de tiempo en la formación de impulsos variables de 0.1 a 10  $\mu s$  (31).

d) Analizador multicanal.

El analizador multicanal es un dispositivo capaz de seleccionar y clasificar los impulsos según su altura que es proporcional a la energía transferida por la radiación electromagnética al detector.

Su funcionamiento se basa en la conversión mediante un convertidor analógico-digital de cada impulso del detector en un tren de pequeños impulsos proporcionado por un oscilador de cuarzo de alta precisión, cuyo número es proporcional a la amplitud del impulso original. El número de impulsos que llegan al analizador durante el período de la medida es almacenado en una memoria constituida por un conjunto de núcleos de ferrita magnética, donde cada tren de

7  
impulsos es almacenado de acuerdo con su número en un elemento constitutivo de la memoria. La capacidad de almacenamiento de cuentas en cada canal varía - entre  $10^5$  y  $10^6$ .

El analizador, además del convertidor analógico-digital y del oscilador de cuarzo consta de una - pantalla de rayos catódicos para visualización de los espectros y de diversos periféricos para la salida de datos almacenados en la memoria, tales como perforadores de cinta de papel de alta velocidad, registros - gráficos X - Y para impresión del contenido de la memoria, grabadores de cinta magnética, teletipos, - etc.

En espectrometría gamma de alta resolución con detectores de Ge(Li), el número de canales que se utiliza habitualmente es de 4000. En nuestro caso, para estudiar el espectro de impulsos procedente del amplificador, se ha utilizado un analizador multicanal de 4096 canales, es decir, con 4096 núcleos de ferrita distribuidos en una matriz 64 x 64.

### 2.3. Origen de los rayos X en los productos de las reacciones nucleares (n, $\gamma$ )

Hasta la fecha en análisis por activación se ha prestado poca atención a los rayos X emitidos durante la desintegración radiactiva de los productos de la activación y a su posible utilización para la identificación y cuantificación de los elementos existentes en la muestra.

En general, en las tablas de características de los isótopos radiactivos no aparece reflejada la presencia de la emisión de rayos X como una parte del proceso total de desintegración, concretamente en los productos de activación mediante neutrones procedentes de un reactor nuclear que son generalmente isótopos inestables emisores beta y gamma en los que la producción simultánea de rayos X se ha ignorado.

La mayoría de los rayos X de los productos de una reacción nuclear (n,  $\gamma$ ) son debidos a los procesos que acompañan a la desintegración radiactiva de los radionucleidos formados.

Los isótopos estables de los elementos, por captura neutrónica originan productos de activación inestables que se desintegran de distintas maneras, dando lugar a la emi-

sión de rayos X característicos que se pueden clasificar en tres grupos atendiendo al mecanismo de su producción:

a) Rayos X debidos a la desintegración beta seguida por conversión interna.

Este proceso origina los rayos X característicos - del elemento que le sigue en el sistema periódico.

La emisión de partículas  $\beta^-$  se da en los isótopos radiactivos situados a la derecha de la línea de estabilidad en la carta de nucleidos, ya que estos nucleidos tienen una relación neutrón/protón mayor que la correspondiente a la zona de estabilidad de sus respectivos elementos, es decir, tienen un exceso de neutrones. Como consecuencia, uno de sus neutrones se convierte en un protón - mediante la emisión de una partícula  $\beta^-$  transformándose - así en un nuevo nucleido que está más cerca de la línea - de estabilidad o que es estable.

La ecuación que define la desintegración  $\beta^-$  se puede escribir de la manera siguiente:



Por lo tanto, en la emisión de una partícula  $\beta^-$  por

un núcleo, el número de masa de éste permanece inalterado, mientras que el número atómico aumenta en una unidad.

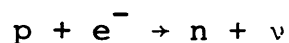
La conversión interna es una pérdida de la energía - de excitación del núcleo hijo formado. Esta energía se transmite a los electrones de las capas más internas que se emiten en forma de grupos monoenergéticos (electrones de conversión), dejando huecos vacíos, cuya ocupación por electrones de capas más externas origina la emisión de los rayos X característicos del elemento ( $Z + 1$ ).

b) Rayos X debidos a captura electrónica orbital.

En este proceso se originan los rayos X del elemento que precede al nucleido radiactivo en el sistema periódico.

La captura electrónica es un proceso por el cual un isótopo radiactivo con exceso de protones, con relación a la zona de estabilidad, puede transformar un protón en un neutrón, capturando el núcleo un electrón orbital, que suele ser de la capa K que es la más cercana al núcleo, aunque también puede ser de la capa L.

El proceso de captura electrónica se puede representar como sigue:



donde  $e^-$  es el electrón capturado.

Los cambios que se originan en los valores de  $Z$  y  $A$  en este proceso son idénticos a los que tienen lugar en la emisión de positrones,  $A$  permanece inalterado y  $Z$  se transforma en  $Z-1$ .

Para que la captura electrónica tenga lugar, no es necesario que el nucleido padre  $Z^A$  tenga un nivel energético muy superior al del nucleido hijo  $(Z-1)^A$ , como ocurre en el caso de la desintegración por emisión de positrones, que sólo es posible si la masa del átomo  $Z^A$  supera a la del  $(Z-1)^A$  en una cantidad por lo menos de dos veces la masa del electrón, lo que equivale a una energía de 1.02 MeV.

Como consecuencia del proceso de captura electrónica, el átomo hijo queda con un número correcto de electrones, puesto que tiene un protón menos en su núcleo que el átomo padre, pero además, queda un hueco libre en la capa  $K$ , (si pertenecía a ésta el electrón capturado), que al ocuparse por otro electrón más externo, da lugar a la emisión de un rayo  $X$  característico del elemento ( $Z-1$ ).

c) Rayos  $X$  debidos a transición isomérica seguida de conversión interna.

Este proceso origina los rayos X del elemento padre.

El isótopo radiactivo que se ha formado a partir del isótopo estable por captura neutrónica se encuentra en un estado excitado en el que puede permanecer a veces como tal estado excitado durante segundos, minutos y aún días, de acuerdo con su período de semidesintegración.

Un núcleo, en un estado excitado de este tipo, se comporta como un isótopo diferente y se llama isómero. - La transición al estado fundamental se llama transición isomérica y se puede realizar por emisión de la energía de excitación en forma de electrones de conversión (32) que se emiten. Los huecos libres se completan con los - electrones de capas más externas con emisión simultánea de los rayos X característicos.

Por lo tanto, los dos procesos principales responsables de la producción de rayos X en la desintegración radiactiva son: la captura electrónica y la conversión - interna de los rayos gamma.

En ambos casos las vacantes se originan en las órbitas electrónicas más bajas, (principalmente en la capa K), de los átomos que se están desintegrando. Como la activa-



ción con neutrones térmicos origina principalmente isótopos radiactivos con exceso de neutrones con relación a la línea de estabilidad, son relativamente pocos los isótopos que se desintegran por captura electrónica que puedan producirse en un flujo de neutrones térmicos en un reactor. Solamente las transiciones isoméricas, (transiciones gamma de alta multiplicidad), presentan coeficientes de conversión interna elevados (33). En general, la conversión interna se da con mayor frecuencia en los elementos pesados cuando se emiten rayos gamma de baja energía ( $< 0.5$  MeV). En los elementos más ligeros y con rayos de energía mayor, la frecuencia de conversión interna es relativamente pequeña, excepto en algunos casos especiales.

Como ejemplo de los mecanismos predominantes de producción de rayos X en la reacción  $(n, \gamma)$  se puede citar el caso de los isótopos radiactivos del hafnio.

Por captura de neutrones los isótopos estables del hafnio (elemento Z) dan lugar a los siguientes isótopos radiactivos:

$\text{Hf}_{72}^{174}$	$(n, \gamma)$	$\text{Hf}_{72}^{175}$	$T_{1/2} = 70.0$ días
$\text{Hf}_{72}^{179}$	$(n, \gamma)$	$\text{Hf}_{72}^{180m}$	$T_{1/2} = 5.5$ horas
$\text{Hf}_{72}^{180}$	$(n, \gamma)$	$\text{Hf}_{72}^{181}$	$T_{1/2} = 42.5$ días

El isótopo radiactivo Hf-175 (70.0 d) se desintegra por captura electrónica K, dando lugar a la emisión de las líneas características de la serie K del lutecio (elemento Z-1).

El Hf-180<sup>m</sup> (5.5 h) por transición isomérica seguida de conversión interna, origina la emisión de los rayos X de la serie K del hafnio (elemento Z).

El Hf-181 (42.5 d) por desintegración  $\beta^-$  seguida de conversión interna de la radiación gamma, da lugar a la emisión de las líneas K $\alpha$  y K $\beta$  del tántalo (elemento Z+1).

En la práctica la intensidad de la radiación X producida en una reacción nuclear (n, $\gamma$ ) depende de una serie de factores (34) que son independientes del tipo de proceso que acompañe a la desintegración radiactiva:

- Abundancia isotópica y sección eficaz de captura neutrónica del isótopo.
- Período del radionucleido formado que se puede desintegrar, bien por captura electrónica o por conversión interna.
- Abundancia y naturaleza de otras radiaciones asociadas.

das que contribuyen al Compton continuo y a la radiación de frenado.

- Eficiencia de detección en función de la energía - del detector que está relacionada con la longitud de onda de la radiación y el número atómico.

También hay una serie de factores dependientes del tipo de proceso que ha tenido lugar. En este segunda caso se deben citar:

- Relación entre emisión de positrón y captura electrónica, cuando el proceso que tiene lugar es la - emisión de positrones.
- Coeficiente de conversión cuando el proceso que - tiene lugar es el de conversión interna.
- Rendimiento fluorescente por vacante electrónica - producida.
- Para elementos pesados, la preferencia de emisión de rayos K ó L, que está determinada por la estructura de las capas electrónicas del elemento.

### 3. EXPERIMENTAL

### 3.1. Determinación del poder de resolución del detector de germanio compensado con litio, LEPS, especial - para fotones de bajas energías.

El poder de resolución de un detector de semiconductores se suele expresar mediante la anchura del pico a la mitad de su altura máxima, expresada en KeV. El poder de resolución de un detector nos indica la posibilidad de distinguir dos radiaciones gamma de energías muy próximas, la cual depende de la anchura del pico. La resolución se suele indicar con el anagrama F.W.H.M. iniciales de la expresión inglesa "Full Width at Half Maximum".

En la región de altas energías es habitual expresar la resolución relativa al pico de 1332.5 KeV del Co-60 y para la región de bajas energías la relativa al pico de 122.1 KeV del Co-57, por ser ambos isótopos muy utilizados como patrones.

La resolución nos indica también el funcionamiento global de la cadena de detección, que en el presente trabajo está constituida por las siguientes partes:

- Detector de germanio compensado con litio especial para fotones de bajas energías, LEPS, ORTEC modelo

Este detector es de tipo plano, de baja capacitancia, con un diámetro de 25 mm, un espesor de 6.8 mm y un volumen activo de 3 cm<sup>3</sup>. En su parte superior va acoplada una ventana de berilio de 10 mm de diámetro.

- Preamplificador de impulsos, sensible a la carga modelo ORTEC 120-4 y filtro de voltaje modelo 119.

Estas unidades están directamente acopladas al detector para evitar un aumento de la capacitancia de salida del detector.



Figura 3-1.- Detector LEPs existente en el Laboratorio de Técnicas Analíticas Nucleares del Centro Nacional de Energía Nuclear "Juan Vi-gón"

- Amplificador lineal modelo ORTEC 450, con constantes de tiempo de formación de impulsos que varían desde 0.1 a 10  $\mu$ s.
- Analizador multicanal Hewlett-Packcard de 4096 canales.

La resolución del detector LEPS es una función de la energía del fotopico y depende del valor de las constantes de tiempo del amplificador y del voltaje de operación.

Experimentalmente se obtuvieron los siguientes valores para la resolución, (en KeV), del pico de 122.1 KeV - del Co-57, con un voltaje de operación de 1200 voltios, - en función de los tiempos de integración y diferenciación de los impulsos.

		Diferenciación ( $\mu$ s)			
		0.5	1	2	5
Integración ( $\mu$ s)	1	0.893	0.877	0.857	0.921
	2	0.817	0.828	0.874	0.836
	5	---	0.965	0.974	0.885

El valor óptimo de la resolución del detector LEPS obtenido, fué de 0.817 KeV, para el pico de 122.1 KeV del Co-57, para valores de las constantes de tiempo del amplificador de 2 y 0.5  $\mu$ s, respectivamente, y un voltaje de - 1200 V.

La disminución que se observa en el poder de resolución en relación con los valores óptimos nominales, del orden de 0.65 KeV, puede provenir del propio detector, o bien de la cadena electrónica (35), ya que los factores que influyen en la resolución de un espectrómetro con detector de germanio son:

- Excesiva corriente de fuga del detector, causada por condensación de humedad dentro del criostato.
- Generación de ruidos microfónicos. En los sistemas criogénicos, las vibraciones mecánicas de los componentes del circuito de entrada con respecto a superficies de distinto potencial pueden ser debidas: al burbujeo del nitrógeno líquido, a turbulencias en los sistemas automáticos de transferencia de nitrógeno, a vibraciones de otro equipo en contacto con el criostato del detector o al ruido ambiental.
- Ruido electrónico asociado al conjunto preamplificador - amplificador



- Fluctuaciones estadísticas en la cantidad de carga producida y recogidas por unidad de energía absorbida.

Para un determinado sistema los dos primeros factores son constantes (36), pues dependen de la calidad del detector. Luego para un buen detector, el poder de resolución en la determinación de las energías está limitado por las fluctuaciones estadísticas en la recogida de carga y por el ruido del amplificador.

Para altas energías el ensanchamiento del pico debido a fluctuaciones estadísticas llega a ser comparable con el debido al ruido del amplificador, pero para bajas energías, que es nuestro caso, al ser menores las fluctuaciones estadísticas, la anchura del pico viene limitada por el ruido del amplificador.

### 3.2. Determinación de la eficiencia absoluta del detector LEPS en función de la energía de la radiación gamma.

La eficiencia de detección absoluta indica la probabilidad, de que un fotón de una cierta energía emitido por una fuente radiactiva, interaccione con el detector, con la pérdida de una cantidad finita de energía.

Los valores de la eficiencia de detección absoluta de un detector obtenidos teórica y experimentalmente -- coinciden, en general, con muy buena aproximación, pero en ellos no se ha tenido en cuenta el problema de la radiación difusa, es decir, aquellos fotones que llegan al detector de una forma secundaria mediante dispersión o rebote de los fotones emitidos por la fuente en los diversos materiales que rodean el conjunto fuente-detector.

La contribución de la radiación difusa es muy dificil de evaluar, pero como sabemos que la energía de este tipo de radiación es menor que la del fotón emitido por la fuente, una relación más precisa entre el número de fotones emitido por la muestra y el espectro de altura de impulsos, la daría una magnitud que estuviese relacionada con la eficiencia del fotopico, puesto que la radiación difusa no contribuye a la formación del fotopico. Esta magnitud se denomina "eficiencia absoluta del fotopico" y es la probabilidad de que un fotón gamma de energía  $E$  -- aparezca dentro del fotopico.

Los valores de la eficiencia absoluta del fotopico no se pueden calcular teóricamente, debido al gran número de interacciones posibles que pueden ocurrir en el detector para que el impulso caiga dentro del fotopico. Por --

ello estos valores hay que determinarlos experimentalmente, utilizando un patrón de calibración.

El método más corriente, de calibrar un detector - para medidas de la energía e intensidad de los fotones, es utilizar fuentes calibradas que emitan uno o varios rayos gamma cuya energía e intensidad se conozcan con precisión. Esto requiere disponer de varias fuentes radiactivas tales como Am-241, I-131, Ta-181, Co-57, Ce-141, Hg-203, Cr-51, Au-198, .. etc., para cubrir con muchas - fuentes el margen de energías desde 60 a 400 KeV, a causa de la especial forma de la curva de eficiencia en esta región. La calibración con varias fuentes es necesaria para detectores con pobre resolución, como los de NaI(Tl), pero en el caso del detector de Ge(Li), es posible utilizar una única fuente que emita varios rayos gamma, siempre que los rayos gamma estén bien resueltos y sus energías e intensidades se conozcan con precisión.

El uso de un patrón de calibración único elimina - dos graves causas de error, asociadas, al empleo de diferentes patrones de calibración, para distintas zonas de la región de energías:

En primer lugar elimina el problema de diferencias, - en la medida de varios patrones, causadas por derivas en

la ganancia electrónica y, por lo tanto, aumenta la precisión de las calibraciones de energía.

En segundo lugar se evitan las incertidumbres en la reproducibilidad de la geometría y duración de la medida en diferentes muestras.

El selenio-75 es una fuente de calibración muy adecuada, para la zona de energías inferior a 400 KeV del espectro gamma, debido a su período de semidesintegración suficientemente largo, 120.4 d (37), y a que se desintegra en un 100%, por captura electrónica, a los niveles excitados del arsénico-75, de los que pasa a través de 13 transiciones gamma (38) al estado fundamental del arsénico. Estos rayos gamma cubren el margen de energías entre 60 y 400 KeV. Es mejor patrón que el Ba-135, utilizado en calibraciones anteriores (39) que tiene un doblete (79.6 - 81.1 KeV), que no puede ser resuelto por la mayoría de los detectores y, en consecuencia, proporciona un solo punto de calibración en la parte más importante de la curva. Además, en la región de 82 a 275 KeV, sólo existen rayos gamma muy débiles.

De los rayos gamma del As-75, se han seleccionado 6 bastante intensos, cuyas energías e intensidades, indicadas en la tabla 3-1, se conocen por medidas muy preci-

sas realizadas por Nagpal (40), utilizando un detector de Ge(Li) de  $8 \text{ cm}^3$  y un analizador multicanal de 4096 canales. Como patrones de energía empleó:

$$\text{Am} - 241 \quad (59.568 \pm 0.017 \text{ KeV}) \quad (41)$$

$$\text{Cs} - 137 \quad (661.595 \pm 0.076 \text{ KeV}) \quad (42)$$

Para calcular el porcentaje de fotones absolutos por desintegración, se ha utilizado el esquema de desintegración debido a Edwards y Gallagher (43).

Las eficiencias experimentales se han obtenido para soluciones de Se-75, preparadas a partir de una solución de masa total 9.996 gramos y con una actividad inicial de 12.41 microcurios/gramo a las 12 horas del --- 27-2-1974. La calibración se realizó para una geometría normalizada, en un envase tipo "duquesa", y un volumen total de líquido de  $40 \text{ cm}^3$ , efectuándose la medida directamente en contacto con el detector.

Para el cálculo de las eficiencias experimentales se utilizó el programa, "CALCULO DE LA EFICIENCIA DE UN DETECTOR DE GE LI", escrito en lenguaje Basico, que se incluye en el Apéndice A. En este programa se suministran como datos: la dosis total inicial en microcurios/gramo, el peso total de la solución patrón en miligramos

y las actividades experimentales, corregidas por tiempo de desintegración, e intensidad absoluta del fotopico - considerado en cada caso. Los valores obtenidos para la eficiencia se indican en la tabla 3-2.

Mediante ajuste de los datos de eficiencia por mí nimos cuadrados y evaluación estadística de los mismos, se obtuvo la ecuación que determina la eficiencia, en - función de la energía de la radiación, para nuestro detector LEPS, que está representada en la fig. 3-3 y que responde a la ecuación:

$$E_f = 9.20287 \cdot E^{-1.92444}$$

para las condiciones de geometría indicadas anteriormente, siendo E la energía de la radiación.

Como se ve claramente en la figura, esta fórmula sólo es válida en el tramo recto de la curva, a partir de 110 - 120 KeV.

T A B L A 3-1

ENERGIAS E INTENSIDADES DE LOS RAYOS GAMMA  
DE BAJAS ENERGÍAS DEL SE-75 \*)

---

Energía	Intensidad
(KeV)	(fotones por cada 100 desintegraciones)

---

66.183 $\pm$ 0.1	0.92 $\pm$ 0.05
96.682 $\pm$ 0.1	3.26 $\pm$ 0.10
120.997 $\pm$ 0.1	17.1 $\pm$ 0.51
135.907 $\pm$ 0.1	56.4 $\pm$ 1.69
198.431 $\pm$ 0.1	1.67 $\pm$ 0.08
264.258 $\pm$ 0.1	60.0

\*) Los rayos gamma muy débiles se han excluido.

. T A B L A 3-2

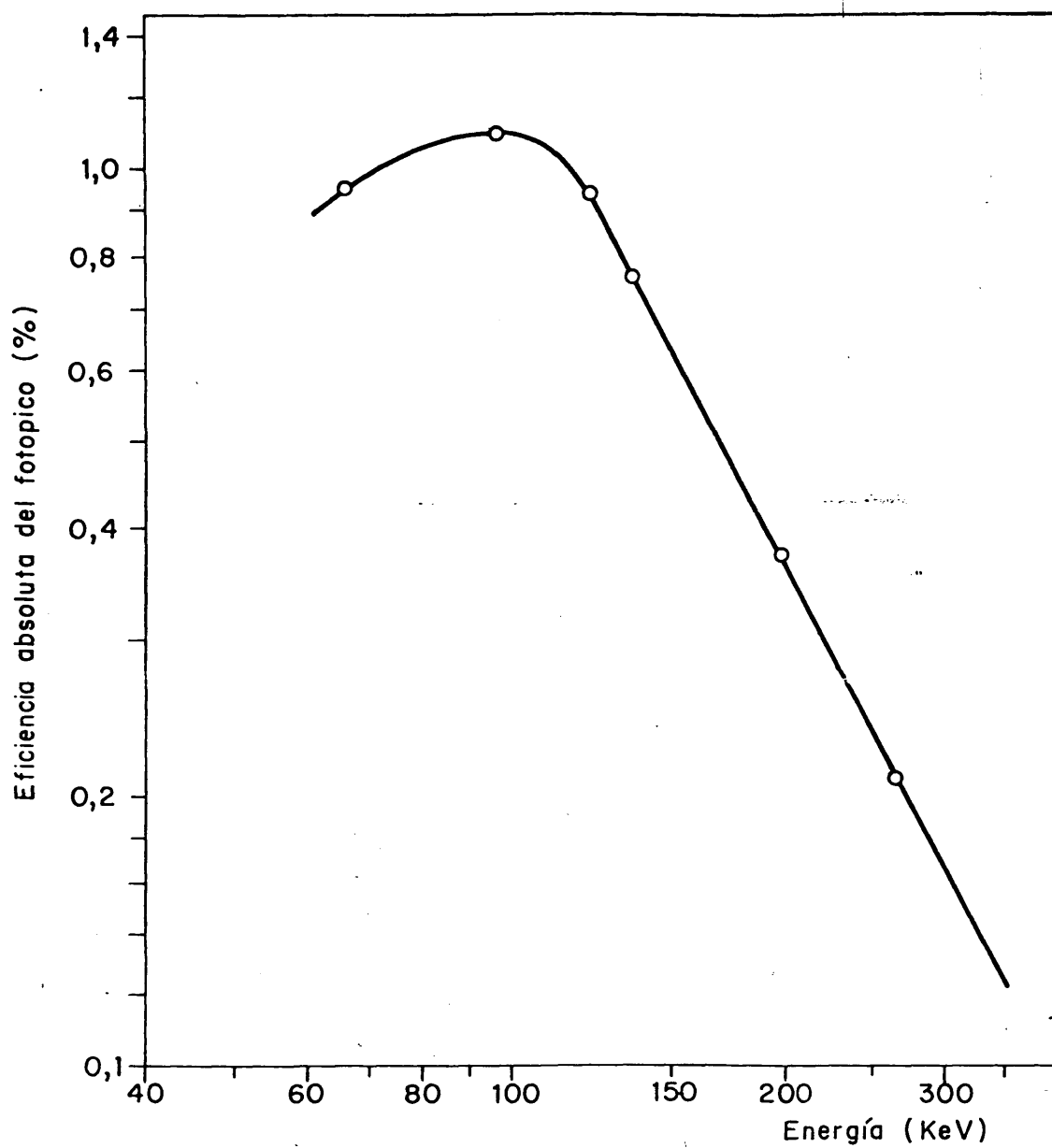
VALORES DE LA EFICIENCIA EXPERIMENTALES EN  
FUNCION DE LA ENERGIA PARA EL DETECTOR LEPS

---

Energía fotopico (Kev)	Eficiencia absoluta del fotopico
66.183 $\pm$ 0.1	0.95 $\pm$ 0.05
96.682 $\pm$ 0.1	1.13 $\pm$ 0.04
120.997 $\pm$ 0.1	0.93 $\pm$ 0.03
135.907 $\pm$ 0.1	0.81 $\pm$ 0.02
198.431 $\pm$ 0.1	0.38 $\pm$ 0.02
264.258 $\pm$ 0.1	0.213 $\pm$ 0.08

---





**Figura 3-3.**

**Eficiencia absoluta del fotopico del detector LEPS, medida con Se-75 como fuente de calibración a una distancia de 0 cm. de la superficie del detector.**

$$E_f = 9.20287 \cdot E^{-1.92444}$$

### 3.3. Selección de los fotones gamma de baja energía y rayos X de diversos elementos más adecuados para emplearlos en el análisis

Se ha realizado un estudio experimental de los fotones de baja energía y rayos X de diversos elementos - más adecuados para identificarlos y determinarlos cuantitativamente. Para ello se procedió a la obtención de una colección de los espectros gamma de los productos de la activación con neutrones térmicos de aquellos elementos del sistema periódico, cuyos productos de activación, - presentan ~~características~~ nucleares adecuadas para poder ser estudiados en las condiciones de trabajo de que disponíamos, es decir:

a) que por activación neutrónica originen radionucleidos de período de semidesintegración largo, dado que no - disponíamos de instalaciones adecuadas para manipular isótopos radiactivos de período corto.

b) que sean emisores de radiación gamma de energías - adecuadas para poderlas medir con nuestro equipo de medida, ya que el detector LEPS sólo puede utilizarse adecuadamente dentro de un margen de energías entre 20 y 400 KeV. Se estudiaron un total de 35 elementos del sistema periódico desde el selenio ( $Z = 34$ ) hasta el thorio ( $Z = 90$ ).

El trabajo experimental realizado comprendió las siguientes fases:

- Preparación de los patrones
- Irradiación con neutrones
- Obtención de los espectros gamma con detectores de semiconductores
- Tratamiento de los espectros por cálculo electrónico.

A continuación se describen con algún detalle cada una de estas etapas.

### 3.3.1. Preparación de patrones de los elementos seleccionados

La preparación de patrones para la irradiación se ha realizado a partir de soluciones madre de concentración adecuada de cada elemento. La concentración del elemento necesaria para obtener en el espectro de energías gamma fotopicos con actividad suficiente para realizar la medida con una precisión determinada, se puede estimar a priori mediante la ecuación general de activación, a partir de los parámetros de la misma, tales como el flujo neutrónico bombardeante, el tiempo de irradiación y tiempo de

desintegración y el conocimiento de los parámetros que influyen en la medida de la actividad, principalmente la eficiencia del equipo de medida.

Para preparar los patrones se ha partido de los elementos en forma pura, cuando fué posible, o bien en forma de óxidos o sales. En este último caso se han preferido los nitratos si el elemento está en forma de catión y las sales amónicas si está en forma de anión, dado que la activación del N, O e H es escasa y no presentan problemas de interferencias.

La preparación de patrones para irradiar a partir de elementos metálicos o compuestos químicos sólidos, tiene la ventaja de que se pueden pesar fácilmente y no presentan problemas para su empaquetamiento durante la irradiación, pero surge una limitación debida a que cuando el elemento presenta una elevada sección eficaz de activación, caso bastante frecuente, el peso del patrón adecuado para no obtener un gran exceso de actividad, debe ser del orden de microgramos y las pesadas de este orden están sujetas a grandes márgenes de error. Por consiguiente, el procedimiento operatorio que se siguió consistió en pesar cantidades del orden de miligra-

mos de compuestos Merck, grado analítico de los elementos a determinar, con lo que reducíamos el error de pesada y después realizar la disolución de los - mismos utilizando ácidos o mezclas de ácidos según el tipo de compuestos. A continuación se procedió a realizar una disolución adecuada con agua destilada para irradiar directamente una alicuota de la solu- ción. De esta manera se evita que la cantidad de - elemento irradiado dé lugar a una elevada actividad inducida que ocasione dificultades para el transpor- te y manipulación de los patrones o haga imposible su medida en forma no destructiva.

En la tabla 3-3 se indican los elementos estu- diados, su forma química utilizada para la prepara- ción de las disoluciones madre y la concentración - del elemento en la solución expresada en mg/ml. Asi mismo, en dicha tabla se incluyen los isótopos ra- diactivos productos de la reacción  $(n,\gamma)$  que se ob- tienen al irradiar con neutrones térmicos, dichos - elementos junto con su período de semidesintegración.

Para la irradiación de los patrones líquidos se utilizaron envases tipo vial de polietileno con tapón de cierre hermético, ya que es un material que se uti- liza frecuentemente para empaquetar muestras líquidas

# T A B L A 3-3

## CONCENTRACION DE LAS DISOLUCIONES MADRE DE LOS ELEMENTOS PUROS ESTUDIADOS

Elemento	Radionucleidos producidos en la reacción (n,γ)	T <sub>1/2</sub>	Forma química utilizada	Concentración elemento en di- solución madre mg/ml
Selenio	Se-75	120.0 d	Se	0.200
Bromo	Br-80 <sup>m</sup>	4.4 h	K Br	0.268
	Br-82	35.4 h		
Estroncio	Sr-87 <sup>m</sup>	2.806h	Sr (NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	2.070
Molibdeno	Mo-99	66.2 h	(NH <sub>4</sub> ) <sub>6</sub> Mo <sub>7</sub> O <sub>24</sub>	0.457
			.4H <sub>2</sub> O	
Rutenio	Ru-97	2.88 d	Ru	1.000
	Ru-105	4.44 h		
	Rh-105	35.88 h		
Paladio	Pd-109	13.47 h	Pd Br <sub>2</sub>	0.299
Cadmio	Cd-115 <sup>m</sup>	43.0 d	CdO	1.751
	Cd-115	53.5 h		
Indio	In-114 <sup>m</sup>	50.0 d	In	2.000
Estaño	Sn-117 <sup>m</sup>	14.0 d	Sn SO <sub>4</sub>	3.456
Teluro	Te-123 <sup>m</sup>	120.0 d	Te	5.000
	Te-131 <sup>m</sup>	30.0 h		
	I -131	8.06 d		
Cesio	Cs-134 <sup>m</sup>	2.046a	Cs	0.367
Bario	Ba-131	11.5 d	Ba(NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	0.525
Lantano	La-140	40.27 h	La <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.500
Cerio	Ce-141	32.38 d	Ce O <sub>2</sub>	1.751
	Ce-143	33.7 h		

T A B L A 3-3 (cont.)

Elemento	Radionucleidos producidos en la reacción (n,γ)	T <sub>1/2</sub>	Forma química utilizada	Concentración elemento en di solución madre mg/ml
Neodimio	Nd-147	11.06 d	Nd <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	4.286
	Nd-149	1.8 h		
	Pm-149	53.1 h		
	Pm-151	27.8 h		
Samario	Sm-153	46.8 h	Sm <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	1.121
Europio	Eu-152 <sup>m</sup>	9.3 h	Eu <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.864
	Eu-152	12.7 a		
Gadolinio	Gd-153	242.0 h	Gd <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	1.735
	Gd-159	18.0 h		
Terbio	Tb-160	72.1 d	Tb <sub>4</sub> O <sub>7</sub>	2.120
Disprosio	Dy-165	2.32 h	Dy <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.348
Holmio	Ho-166	26.9 h	Ho <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.873
Erbio	Er-171	7.52 h	Er <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.874
Tulio	Tm-170	127.0 d	Tm <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	1.401
Yterbio	Yb-169	31.8 d	Yb	1.000
	Yb-175	4.21 d		
Lutecio	Lu-176	5.00x10 <sup>10</sup> a	Lu <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	4.397
		6.74 d		
Hafnio	Hf-175	70.0 d	Hf O <sub>2</sub>	0.847
	Hf-180 <sup>m</sup>	5.5 h		
	Hf-181	42.5 d		
Tántalo	Ta-182	115.0 d	Ta	2.000
Wolframio	W -187	24.0 h	Na <sub>2</sub> WO <sub>4</sub> · 2H <sub>2</sub> O	1.888
Renio	Re-186	90.0 h	Re	1.000
	Re-188	16.8 h		
Osmio	Os-191	15.0 d	Os	1.000
	Os-193	30.0 h		
Iridio	Ir-192	74.2 d	(NH <sub>4</sub> ) <sub>2</sub> IrCl <sub>4</sub> · H <sub>2</sub> O	0.222
	Ir-194	19.15 h		

T A B L A 3-3 (cont.)

Elemento	Radionucleidos producidos en la reacción (n,γ)	T <sub>1/2</sub>	Forma química utilizada	Concentración elemento en di- solución madre mg/ml
Platino	Pt-191	3.0 d	Pt	0.500
	Pt-195 <sup>m</sup>	4.1 d		
	Pt-197	18.0 h		
	Au-199	3.15 d		
Oro	Au-198	2.697 d	Au	3.400
Mercurio	Hg-195 <sup>m</sup>	23.8 h	Hg(NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	0.618
	Hg-197	64.1 h		
	Hg-203	46.59 d		
Thorio	Pa-133	27.4 d	ThO <sub>2</sub>	0.878



en irradiaciones de duración moderada, porque aunque sus propiedades físicas y mecánicas son excelentes, su resistencia al calentamiento por radiación gamma es bastante limitado y no puede utilizarse para irradiaciones largas.

### 3.3.2. Irradiación con neutrones térmicos

Como fuente de neutrones para la producción de reacciones  $(n, \gamma)$  se ha utilizado el reactor nuclear JEN-1, instalado en el Centro Nacional de Energía Nuclear "Juan Vigón" en la Ciudad Universitaria de Madrid, reactor de investigación de tipo piscina. Este reactor pertenece al tipo de reactores heterogéneos, que utilizan como combustible uranio enriquecido en el isótopo U-235 y está refrigerado y moderado por agua ligera albergada en una gran piscina donde está sumergido el núcleo del reactor, compuesto de hasta 30 elementos combustibles de tipo M.T.R. de placas paralelas de uranio enriquecido al 20 % en U-235, de reflectores de grafito y de cuatro barras de control.

Como dispositivos para la irradiación de muestras posee: varios canales de irradiación, dos tubos neumáticos con varias salidas adecuadas para efectuar irradiaciones cortas de duración inferior a 30 minu -

tos y dos tubos verticales para irradiaciones de mayor duración. Estas últimas han sido los dispositivos de irradiación utilizados en el presente trabajo, ya que el tiempo de irradiación elegido para todas las muestras fué de 10 horas.

Los tubos verticales al ser dispositivos de irradiación situados en las proximidades del núcleo están aislados del combustible y del agua que actúa como refrigerante y moderador, lo que permite irradiar las muestras sin tomar excesivas precauciones para asegurar su estanqueidad. La entrada y salida de las muestras en el reactor nuclear se hizo manualmente.

El flujo térmico en los tubos verticales es aproximadamente de  $5 \times 10^{11}$  neutrones por  $\text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$  (44) - cuando el reactor JEN-1 opera a su potencia máxima de 3 megawatios, si bien está acompañado de una elevada componente de flujo epitérmico.

### 3.3.3. Obtención de los espectros gamma de los patrones irradiados con ambos tipos de detectores

De cada patrón irradiado se procedió a una dilución 1/40 con agua destilada.

Después de un tiempo de desintegración o "enfriamiento" de aproximadamente 10 horas, se procedió a medir la radiactividad de estas soluciones en ambos detectores con una geometría normalizada, en envases de polietileno tipo "duquesa", en contacto con el detector.

Para la obtención de los espectros  $\gamma$  de la serie de radionucleidos producidos por la irradiación con neutrones térmicos de los elementos seleccionados, se utilizaron los dos detectores de Ge(Li) existentes en el Laboratorio de Técnicas Analíticas Nucleares de la División de Química y Medio Ambiente del Centro Nacional de Energía Nuclear:

- Detector de Ge(Li) tipo coaxial, de  $40 \text{ cm}^3$  de volumen activo, que se emplea para espectrometría  $\gamma$  en el margen de energías de 100 a 4000 KeV.
- Detector de Ge(Li), LEPS, tipo plano de  $3 \text{ cm}^3$  de volumen activo que se emplea para espectrometría  $\gamma$  en el margen de bajas energías de 0 a 400 KeV.

Con cada uno de estos detectores se realizaron varias medidas de la actividad de todos y cada uno de los patrones irradiados, a tiempos diferentes, de acuerdo

do con los respectivos períodos de semidesintegración de sus productos de activación.

En la tabla 3-4, aparecen reflejadas las características nucleares de los productos de activación neutrónica por reacciones  $(n,\gamma)$  de los 35 elementos seleccionados para nuestro estudio. En la columna 4 se señalan los rayos X y gamma de energía inferior a 400 KeV identificados en los espectros gamma tomados con el detector LEPS. Por último, la columna 5 corresponde a la intensidad de los distintos picos de cada espectro expresada en tanto por ciento con relación al pico mayor y calculados a partir de las áreas de los mismos.

En el Apéndice B se incluye una colección de espectros gamma de los productos de activación neutrónica de los elementos seleccionados, del sistema periódico desde  $Z = 34$  hasta  $Z = 90$  obtenidos mediante el detector LEPS, para la zona de bajas energías de la radiación gamma y rayos X, en el margen comprendido entre 0 y 400 KeV.

T A B L A 3-4

RAYOS X y GAMMA DE BAJA ENERGIA (< 400 KeV) ENCONTRADOS CON EL  
DETECTOR LEPS EN LOS ESPECTROS GAMMA DE ELEMENTOS IRRADIADOS

Elemento	Nucleido	T <sub>1/2</sub>	Rayos X y gamma identificados	Intensidades relativas del espectro %	Interfe - rencias
Se	Se-75	120.0 d	66.1	3.48	
			96.7	9.69	
			121.1	36.61	
			135.9	100.00	
			198.4	6.56	
			264.5	22.62	
			279.5	8.20	
Br	Br-80 <sup>m</sup>	4.4 h	37.0	100.00	
	Br-82 <sup>m</sup>	6.1 m	(11.8+11.9)Br-K <sub>α</sub>	100.00	
	Br-82	35.4 h	92.1	100.00	
Sr	Sr-87 <sup>m</sup>	2.806h	(14.1+14.2)Sr-K <sub>α</sub>	53.13	

## T A B L A 3-4 (Cont.)

Elemento	Nucleido	$T_{1/2}$	Rayos X y gamma identificados	Intensidades relativas del espectro %	Interfe- rencias
Sr	Sr-87 <sup>m</sup>	2.806 h	15.8 Sr-K $\beta$ <sub>1</sub>	9.91	
			388.4	100.00	
Mo	Mo-99	66.2 h	(19.1+19.3)Ru-K $\alpha$	11.54	
			21.6 Ru-K $\beta$ <sub>1</sub>	2.27	
			140.5	100.00	
			181.06	3.81	
Ru	Ru-97	2.88 d	(18.2+18.4)Tc-K $\alpha$	100.00	
			215.2	58.48	
			324.4	1.79	
			(20.1+20.1)Rh-K $\alpha$	100.00	
Ru-105	Ru-105	4.44 h	22.7 Rh-K $\beta$ <sub>1</sub>	14.56	
			129.5	27.17	
			149.0	5.75	
			262.8	7.44	
			316.5	6.79	

T A B L A 3-4 (cont.)

Elemnto	Nucleido	T <sub>1/2</sub>	Rayos X y gamma identificados (Kev)	Intensidades relativas del espectro %	Interfe- rencias
Ru	Ru-105	4.44 h	326.1	1.38	
	Rh-105	35.88h	319.2	100.00	
Pd	Pd-109	13.47h	(22.0+22.2)Ag-K $\alpha$	100.00	
			88.1	16.71	
Cd	Cd-115 <sup>m</sup>	43.0 d	159.0	100.00	
	Cd-115	53.5 h	(24.0+24.2)In-K $\alpha$	100.00	
			27.3 In-K $\beta$ <sub>1</sub>	62.98	
			234.4	37.14	
In			260.8	79.20	
	In-114 <sup>m</sup>	50.0 d	(24.0+24.2)In-K $\alpha$	9.29	
			27.3 In-K $\beta$ <sub>1</sub>	6.76	
			189.9	100.00	
Sn	Sn-117 <sup>m</sup>	14.0 d	158.4	100.00	
Te	Te-123 <sup>m</sup>	120.0d	(27.2+27.5)Te-K $\alpha$	100.00	Te-131 <sup>m</sup> (Te-K $\alpha$ :27.2+27.5)
			159.0	98.21	

T A B L A 3-4

Elemento	Nucleido	$T_{1/2}$	Rayos X y gamma identificados (Kev)	Intensidades relativas del espectro %	Interfe- rencias
Te	Te-131 <sup>m</sup>	30.0 h	(27.2+27.5) Te-K $\alpha$	16.47	Te-123 <sup>m</sup> (Te-K $\alpha$ : 27.2+27.5)
			80.9	100.00	I-131 (80.2)
			102.3	39.01	
			200.7	11.71	
			240.6	7.72	
			234.5	5.18	
	I-131	8.06 d	(80.2)	51.63	
			284.3	11.46	
			364.5	100.00	
Cs	Cs-134 <sup>m</sup>	2.895h	(30.6+31.0) Cs-K $\alpha$	100.00	
			35.0 Cs-K $\beta_1$	23.14	
			127.4	28.76	
Ba	Ba-131	11.5 d	30.6 Cs-K $\alpha_2$	73.83	
			31.0 Cs-K $\alpha_1$	100.00	



T A B L A 3-4

Elemento	Nucleido	T <sub>1/2</sub>	Rayos X y gamma identificados (Kev)	Intensidades relativas del espectro %	Interfe- rencias
Ba	Ba-131	11.5 d	35.0 Cs-K $\beta$ <sub>1</sub>	11.31	
			35.8 Cs-K $\beta$ <sub>2</sub>	20.65	
			123.7	20.91	
La	La-140	40.27 h	216.0	3.95	
			109.4	7.86	
			131.1	13.29	
			242.0	2.69	
Ce	Ce-141	32.38 d	328.7	100.00	
			(35.0+36.0) Pr-K $\alpha$	100.00	Ce-143(Pr-K $\alpha$ ;35.0+36.0)
			40.7 Pr-K $\beta$ <sub>1</sub>	25.68	Ce-143(Pr-K $\beta$ <sub>1</sub> :40.7)
	Ce-143	33.7 h	145.4	17.95	
			(35.0+36.0) Pr-K $\alpha$	100.00	Ce-141(Pr-K $\alpha$ ;35.0+36.0)
			40.7 Pr-K $\beta$ <sub>1</sub>	25.68	Ce-141(Pr-K $\beta$ <sub>1</sub> :40.7)
			57.4	23.47	
			231.5	0.45	

T A B L A 3-4 (cont.)

Elemento	Nucleido	$T_{1/2}$	Rayos X y gamma identificados (Kev)	Intensidades relativas del espectro %	Interfe- rencias
Ce	Ce-143	33.7 h	293.3	6.89	
Nd	Nd-147	11.06 d	91.1	100.00	
			120.5	3.13	
			75.4	4.20	
	Nd-149	1.8 h	38.2 Pm-K $\alpha_2$	88.47	
			38.7 Pm-K $\alpha_1$	100.00	
			43.8 Pm-K $\beta_1$	17.56	
			44.9 Pm-K $\beta_2$	24.59	
			97.02	8.06	
			114.3	4.78	
Nd	Nd-149	1.8 h	139.2	1.01	
			155.9	1.09	
			177.8	5.57	
			211.3	1.62	

T A B L A 3-4 (cont.)

Elemento	Nucleido	T <sub>1/2</sub>	Rayos X y gamma identificados (Kev)	Intensidades relativas del espectro %	Interfe- rencias
Nd	Nd-149	1.8 h	267.7	0.31	
	Pm-149	53.1 h	285.9	100.00	
	Pm-151	27.8 h	45.4 Sm-K $\beta$ <sub>1</sub>	55.54	
			100.02	100.00	
			163.5	42.97	
Sm			201.8	7.93	
			208.9	15.98	
			227.1	7.82	
			240.0	31.07	
			258.0	11.74	
			290.7	3.21	
			324.0	2.73	
			340.1	80.05	
			344.9	2.58	
	Sm-153	46.8 h	(40.9+41.5)Eu-K $\alpha$	100.00	

T A B L A 3-4 (cont.)

Elemento	Nucleido	$T_{1/2}$	Rayos X y gamma identificados (Kev)	Intensidades relativas del espectro %	Interfe- rencias
Sm	Sm-153	46.8 h	47.0 Eu-K $\beta_1$	23.47	
			69.7	10.44	
			97.4	1.25	
			103.2	53.29	
			144 (Sum 103.2+K $\alpha_1$ )	0.34	
			172.8	0.08	
Eu	Eu-152 <sup>m</sup>	9.3 h	(40.9+41.5) Eu-K $\alpha$	100.00	
			47.0 Eu-K $\beta_1$	23.55	
			121.8	20.11	
			344.2	0.64	
	Eu-152	12.7 a	(39.5+40.1) Sm-K $\alpha$	100.00	
			(42.3+43.0) Gd-K $\alpha$	2.06	
			45.4 Sm-K $\beta_1$	22.08	
			48.7 Gd-K $\beta_1$	0.37	

Elemento	Nucleido	$T_{1/2}$	Rayos X y gamma identificados (Kev)	Intensidades relativas del espectro %	Interfe- rencias
Eu	Eu-152	12.7 a	121.8	28.54	
			244.7	1.44	
			344.3	2.66	
Gd	Gd-153	242.0 d	(40.9+41.5)Eu-K $\alpha$	6.65	
			47.0 Eu-K $\beta_1$	100.00	
			75.4	8.35	
			107.5	2.52	
			103.2	1.68	
Gd-159		18.0 h	(43.7+44.5)Tb-K $\alpha$	100.00	
			50.4 Tb-K $\beta_1$	6.94	
			51.7 Tb-K $\beta_2$	1.92	
			58.0	16.18	
			79.4	72.29	
			363.6	1.76	

T A B L A 3-4 (Cont.)

Elemento	Nucleido	$T_{1/2}$	Rayos X y gamma identificados (Kev)	Intensidades relativas del espectro %	Interfe- rencias
Tb	Tb-160	72.1 d	(45.2+46.0) Dy-K $\alpha$	75.33	
			52.1 Dy-K $\beta_1$	27.62	
			86.8	100.00	
			197.0	10.47	
			215.6	6.85	
Dy	Dy-165	2.32 h	298.5	24.76	
			(46.7+47.5) Ho-K $\alpha$	100.00	
			53.9 Ho-K $\beta_1$	20.07	
			55.3 Ho-K $\beta_2$	4.28	
			94.6	40.65	
Ho	Ho-166	26.9 h	(48.2+49.1) Er-K $\alpha$	97.22	
			55.7 Er-K $\beta_1$	24.32	
			57.2 Er-K $\beta_2$	4.28	
			80.6	100.00	

T A B L A 3-4 (cont.)

Elemento	Nucleido	$T_{1/2}$	Rayos X y gamma identificados (Kev)	Intensidades relativas del espectro %	Interfe- rencias
Er	Er-171	7.52 h	49.8 Tm-K $\alpha_2$	26.83	
			50.7 Tm-K $\alpha_1$	100.00	
			57.5 Tm-K $\beta_1$	23.35	
			59.1 Tm-K $\beta_2$	4.91	
			111.6	58.27	
			116.7	6.09	
			124.0	22.95	
			237.1	0.01	
			277.4	0.33	
			295.9	14.34	
Tm	Tm-170	127.0 d	308.3	28.73	
			420.0	0.17	
			51.4 Yb-K $\alpha_2$	25.07	
			52.4 Yb-K $\alpha_1$	54.32	

T A B L A 3-4 (cont.)

Elemento	Nucleido	$T_{1/2}$	Rayos X y gamma identificados	Intensidades relativas del espectro %	Interfe- rencias
Tm	Tm-170	127.0d	59.4 Yb-K $\alpha_1$	17.82	
			61.0 Yb-K $\alpha_2$	4.04	
			84.3	100.00	
Yb	Yb-169	31.8 d	(49.8+50.7) Tm-K $\alpha$	100.00	
			57.5 Tm-K $\beta_1$	17.74	
			63.5	41.78	
			110.0	9.22	
			130.7	4.10	
			177.0	4.73	
Yb-175	Yb-175	4.21 d	197.8	6.15	
			53.0 Lu-K $\alpha_2$	25.44	
			54.1 Lu-K $\alpha_1$	100.00	
			61.3 Lu-K $\beta_1$	20.89	
			113.5	59.14	



T A B L A 3-4 (cont.)

Elemento	Nucleido	$T_{1/2}$	Rayos X y gamma identificados	Intensidades relativas del espectro %	Interfe- rencias
Yb	Yb-175	4.21 d	137.4	1.62	
			144.8	5.56	
			282.6	12.85	
Lu	Lu-176	$5.00 \times 10^{10}$ a	54.6 Hf-K $\alpha_2$	40.95	Lu-177 (Hf-K $\alpha_2$ :54.6)
			55.8 Hf-K $\alpha_1$	100.00	Lu-177 (Hf-K $\alpha_1$ :55.8)
			63.2 Hf-K $\beta_1$	28.89	Lu-177 (Hf-K $\beta_1$ :63.2)
			65.2 Hf-K $\beta_2$	57.75	Lu-177 (Hf-K $\beta_2$ :65.0)
			88.4	30.38	
Lu-177		6.74 d	54.6 Hf-K $\alpha_2$	37.34	Lu-176 <sup>m</sup> (Hf-K $\alpha_2$ :54.6)
			55.8 Hf-K $\alpha_1$	91.18	Lu-176 <sup>m</sup> (Hf-K $\alpha_1$ :55.8)
			63.2 Hf-K $\alpha_1$	26.34	Lu-176 <sup>m</sup> (Hf-K $\beta_1$ :63.2)
			65.0 Hf-K $\beta_2$	5.26	Lu-176 <sup>m</sup> (Hf-K $\beta_2$ :65.0)
			71.6	8.47	
			113.0	100.00	
			208.3	42.97	

Elemento	Nucleido	$T_{1/2}$	Rayos X y gamma identificados	Intensidades relativas del espectro %	Interfe- rencias
Lu	Lu-177	6.74 d	249.7	0.50	
Hf	Hf-175	70.0 d	53.0 Lu-K $\alpha_2$	34.14	
			54.1 Lu-K $\alpha_1$	100.00	
			61.3 Lu-K $\alpha_1$	26.42	
			343.6	10.22	
	Hf-180 <sup>m</sup>	5.5 h	(54.6+55.8) Hf-K $\alpha$	36.42	
			57.5	100.00	Hf-181 (Ta-K $\alpha_1$ :57.5)
			63.2 Hf-K $\beta_1$	1.19	
			332.1	0.47	
	Hf-181	42.5 d	(56.3+57.5) Ta-K $\alpha$	77.70	Hf-180 <sup>m</sup> (57.5)
			65.2 Ta-K $\beta_1$	20.77	
			133.0	100.00	
			136.2	13.70	
			345.9	3.83	

Elemento	Nucleido	$T_{1/2}$	Rayos X y gamma identificados (Kev)	Intensidades relativas del espectro %	Interfe- rencias
Ta	Ta-182	115.0 d	(58.0+59.3)W-K $\alpha$	31.88	
			65.7	2.68	
			67.2 W-K $\beta_1$	100.00	
			100.1	21.08	
			113.7	2.34	
			116.4	0.45	
			152.4	6.66	
			156.4	2.24	
			179.4	1.98	
			198.3	0.72	
			222.1	3.38	
W	W-187	24.0 h	229.3	1.40	
			164.1	1.05	
			59.7 Re-K $\alpha_2$	50.21	
			61.1 Re-K $\alpha_1$	100.00	
			69.3 Re-K $\beta_1$	29.90	
			134.2	44.35	

T A B L A 3-4 (cont.)

Elemento	Nucleido	$T_{1/2}$	Rayos X y gamma identificados	Intensidades relativas del espectro %	Interfe- rencias
Re	Re-186	90.0 h	58.0 W-K $\alpha_2$	20.53	
			59.3 W-K $\alpha_1$	49.30	
			67.2 W-K $\beta_1$	16.99	
			122.6	5.44	
Re	Re-188	16.8 h	61.6 Os-K $\alpha_2$	20.48	
			63.0 Os-K $\alpha_1$	47.56	
			71.4 Os-K $\beta_1$	14.38	
			73.3 Os-K $\beta_2$	2.78	
			155.0	100.00	
Os	Os-191	15.0 d	63.3 Ir-K $\alpha_2$	50.77	Os-193(Ir-K $\alpha_2$ :63.3)
			65.0 Ir-K $\alpha_1$	100.00	Os-193(Ir-K $\alpha_1$ :65.0)
			73.6 Ir-K $\beta_1$	35.01	Os-193(Ir-K $\beta_1$ :73.6)
			75.6 Ir-K $\beta_2$	7.69	Os-193(Ir-K $\beta_2$ :75.5)
			129.5	57.58	

Elemento	Nucleido	$T_{1/2}$	Rayos X y gamma identificados	Intensidades relativas del espectro %	Interfe- rencias
Os	Os-193	30.0 h	63.3 Ir-K $\alpha_2$	50.77	Os-191 (Ir-K $\alpha_2$ :63.3)
			65.0 Ir-K $\alpha_1$	100.00	Os-191 (Ir-K $\alpha_1$ :65.0)
			73.6 Ir-K $\beta_1$	35.01	Os-191 (Ir-K $\beta_1$ :73.6)
			75.5 Ir-K $\beta_2$	7.69	Os-191 (Ir-K $\beta_2$ :75.5)
			138.9	0.98	
Ir	Ir-192	74.2 d	61.5 Os-K $\alpha_2$	9.38	
			63.0 Os-K $\alpha_1$	19.19	
			65.1 Pt-K $\alpha_1$	45.45	
			66.8 Pt-K $\alpha_1$	100.00	
			75.7 Pt-K $\beta_1$	31.89	
			205.8	8.85	
			295.9	32.13	
			308.4	33.30	
			316.5	95.18	
Ir	Ir-194	19.15 h	293.0	18.24	
			328.5	100.00	
Pt	Pt-191	3.0 d	63.3 Ir-K $\alpha_2$	25.08	

T A B L A 3-4 (cont.)

Elemento	Nucleido	T <sub>1/2</sub>	Rayos X y gamma identificados	(Kev)	Intensidades relativas del espectro %	Interfe - rencias
Pt	Pt-191	3.0 d	64.9 Ir-Kα <sub>1</sub>		100.00	
			73.6 Ir-Kβ <sub>1</sub>		17.19	
			75.6 Ir-Kβ <sub>2</sub>		12.68	
			82.4		14.59	
	Pt-195 <sup>m</sup>	4.1 d	98.9		100.00	
	Pt-197	18.0 h	67.0 Au-Kα <sub>2</sub>		20.24	
68.8 Au-Kα <sub>1</sub>				23.76	Au-199 (Hg-Kα <sub>2</sub> :68.8)	
77.3				100.00		
80.1 Au-Kβ <sub>2</sub>				9.48		
			191.3		5.48	
	Au-199	3.15 d	68.8 Hg-Kα <sub>2</sub>		37.06	Pt-197 (Au-Kα <sub>1</sub> :68.8)
70.8 Hg-Kα <sub>1</sub>				47.77		
158.4				100.00		
208.2				10.10		
Au	Au-198	3.697d	68.9 Hg-Kα <sub>2</sub>		52.23	

T A B L A 3-4 (cont.)

Elemento	Nucleido	$T_{1/2}$	Rayos X y gamma identificados	Intensidades relativas del espectro %	Interfe- rencias
Au	Au-198	2.697d	70.8 Hg-K $\alpha_1$	100.00	
			80.2 Hg-K $\beta_1$	32.99	
			82.4 Hg-K $\beta_2$	7.19	
Hg	Hg-197 <sup>m</sup>	23.8 h	133.9	100.00	
	Hg-197	64.1 h	67.0 Au-K $\alpha_2$	54.22	
			68.8 Au-K $\alpha_2$	100.00	
			77.3 } 78.0 Au-K $\beta_1$	90.70	
Th	Pa-233	27.4 d	80.1 Au-K $\beta_2$	8.71	
			145 (Sum 77.6+K $\alpha_1$ )	0.20	
			155 (Sum 77.6+K $\beta_1$ )	0.09	
			1.1.5	0.53	
			219.2	100.00	
Th	Pa-233	27.4 d	75.4	10.96	
			86.8	15.89	

T A B L A 3-4 (cont.)

Elemento	Nucleido	$T_{1/2}$	Rayos X y gamma identificados	Intensidades relativas del espectro %	Interfe- rencias
Th	Pa-233	27.4 d	94.7 U-K $\alpha_2$	63.95	
			98.4 U-K $\alpha_1$	100.00	
			103.9	5.27	
			111.3 U-K $\beta_1$	26.55	
			114.4 U-K $\beta_2$	7.99	
			300.1	4.63	
			311.9	28.72	
			340.5	24.78	

Observaciones: Los valores indicados para las intensidades relativas son los encontrados en el momento y condiciones experimentales de la medida de la actividad.



#### 3.3.4. Tratamiento por cálculo electrónico de los espectros gamma para la obtención de las energías y actividades correspondientes a cada pico

Los datos de los espectros gamma suministrados por el analizador multicanal de 4096 canales Hewlett-Packard de nuestro equipo de medida son: el tiempo de duración de la medida y el número de canal y las cuentas acumuladas en cada uno de ellos durante el tiempo de medida. Para calcular las actividades correspondientes a cada pico se procedió, en primer lugar, a la identificación de los fotopicos y al cálculo automático de las áreas netas de los mismos mediante la utilización del programa GAMMAS, escrito en lenguaje Fortran, para la resolución y cálculo automático de espectros gamma obtenidos con detectores de Ge(Li) (45). Este programa permite procesar los espectros gamma de cualquier número de canales con ayuda de una calculadora electrónica Hewlett-Packard, modelo 2114 B.

El programa realiza el procesado automático de los espectros a partir de los datos de los mismos perforados en cinta de papel, suministrados por cualquier tipo de analizador multicanal. Sólo se suministran manualmente al computador vía teletipo unos pocos datos

como el número de canales que hay en la cinta y los datos de calibración, ya que el resto del proceso - es enteramente automático. Los criterios adoptados para localizar los fotopicos y sus bordes, así como para determinar el fondo del espectro (formado principalmente por Compton continuo de pìcos de energías más altas, por la radiación de frenado de las partículas beta y también por el fondo radiactivo - natural) mediante la generación de una línea base - artificial por un proceso iterativo de eliminación de los fotopicos, están basados en el significado - estadístico de las cuentas acumuladas en cada canal que hace posible obtener el fondo correcto debajo - del fotopico.

El programa GAMMAS incluye opciones para calcular el área de los fotopicos por tres métodos diferentes: método del área total, método de Cowell y método de Wasson, y también para obtener una serie de secciones del espectro, que se pueden seleccionar a voluntad con datos del contenido del canal y de la línea base, para proceder a su examen cuando sea necesario. También es posible tratar espectros de un - número ilimitado de canales, con un computador de memoria limitada gracias a la resolución por partes del espectro y la rotación de los datos en la memoria.

Aparte de suministrar la posición y los bordes del fotopico, el programa da su energía en KeV, su resolución y también el área expresada en cuentas por minuto calculada de acuerdo con el método seleccionado, el error estadístico de la misma, el fondo y el límite de detección cualitativa del fotopico de acuerdo con el criterio de Currie (46).

### 3.4. Aplicación de los fotones de baja energía en análisis por activación neutrónica

#### 3.4.1. Sensibilidades analíticas de elementos puros obtenidas experimentalmente por la medida de fotones de baja energía

Las sensibilidades analíticas de los elementos seleccionados, para un tiempo de irradiación de 10 horas y con un flujo neutrónico de  $5 \times 10^{11}$  neutrones por  $\text{cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ , se calcularon a partir del área total neta del fotopico de mayor intensidad proporcionada por el programa GAMMAS (45).

El área neta del fotopico la calcula el programa GAMMAS según el método del área total, como la suma de las actividades de los canales entre los bordes - inicial y final del pico menos las actividades correspondientes a la línea base. Las actividades se corrigieron por desintegración radiactiva, normalizando a un origen de tiempos común, ya que los periodos de semidesintegración de la mayoría de las nucleidos no eran suficientemente largos y las medidas se realizarían necesariamente a tiempo diferente.

En nuestro caso, las correcciones por desintegración radiactiva se refirieron a las 9 horas del día siguiente al final de la irradiación.

Con las actividades experimentales expresadas en cuentas por minuto, conociendo la concentración de cada patrón irradiado, se calcularon en cuentas por minuto/microgramo las actividades específicas correspondientes a cada pico de los distintos radioisótopos. Este dato junto con los límites de detección cualitativa de los picos en cuentas por minuto, proporcionados por el programa GAMMAS, permite determinar la cantidad mínima detectable de cada elemento irradiado para cada uno de los dos tipos de detectores de semiconductores utilizados en las medidas.

### 3.4.2. Comparación de las sensibilidades obtenidas por medidas de fotones de bajas y altas energías

La comparación de las sensibilidades analíticas para los elementos puros obtenidos experimentalmente con el detector LEPS y el detector Ge(Li) tipo coaxial, se ha realizado para el margen de energías del espectro gamma común a ambos tipos de detectores que es la zona comprendida entre 90 y 400 KeV.

En la tabla 3-5 se indican los radionucleidos producidos durante la irradiación con neutrones térmicos, junto con sus correspondientes períodos de semidesintegración, así como los fotopicos seleccionados en cada caso para el cálculo de la sensibilidad analítica. Las sensibilidades obtenidas con uno y otro tipo de detector de Ge(Li) se expresan en la tabla en microgramos. Finalmente en la última columna se valora mediante una "figura de merito" la relación existente entre ambos límites de detección que es la que nos permite juzgar sobre las ventajas de empleo de uno u otro tipo de detector a igualdad de los restantes parametros.

T A B L A 3-5

COMPARACION DE SENSIBILIDADES ANALITICAS DE AMBOS DETECTORES

OBTENIDAS EXPERIMENTALMENTE

Elemento	Radionucleido	T <sub>1/2</sub>	Energía (Kev)	Limite detección Ge(Li) convencional (µg)	Limite detección Ge (Li) LEPS (µg)	Figura de mérito
Se	Se-75	120.0d	135.9	0.37	0.21	1.76
Sr	Sr-87 <sup>m</sup>	2.806h	388.4	0.49	0.30	1.63
Mo	Mo-99	66.2 h	140.5	0.90	0.72	1.25
Ru	Ru-97	2.88 d	215.2	0.89	0.36	2.47
	Ru-105	4.44 h	129.5	1.52	0.50	3.04
	Rh-105	35.88 h	319.2	1.18	1.23	0.96
Cd	Cd-115	53.5 h	260.8	1.24	4.31	0.29
In	In-114 <sup>m</sup>	50.0 d	189.9	0.23	0.94	0.24
Sn	Sn-117 <sup>m</sup>	14.0 d	158.4	1.25	5.58	0.22
Te	I-131	8.06 d	364.5	0.33	1.43	0.23
Ba	Ba-131	11.5 d	123.7	4.87	1.07	4.55
La	La-140	40.27 h	328.7	1.45	0.18	8.05

Elemento	Radionucleido	T <sub>1/2</sub>	Energía (KeV)	Limite detección Ge(Li) convencional (µg)	Limite detección Ge (Li) LEPS (µg)	Figura de mérito
Ce	Ce-141	32.38 d	145.4	0.34	0.65	0.52
	Ce-143	33.7 h	293.3	0.13	0.71	0.18
Nd	Nd-147	11.06 d	91.1	16.34	0.54	36.25
	Pm-149	53.1 h	285.9	5.05	1.62	3.12
	Pm-151	27.8 h	163.5	4.30	1.94	2.22
Sm	Sm-153	46.8 h	103.2	8.20x10 <sup>-4</sup>	4.05x10 <sup>-3</sup>	0.20
Eu	Eu-152	12.7 a	121.8	0.28	0.12	2.33
Gd	Gd-153	242.0 d	97.5	2.23	8.17	0.27
	Gd-159	18.0 h	363.6	0.82	9.77	0.08
Tb	Tb-160	72.1 d	298.5	1.18x10 <sup>-4</sup>	8.54x10 <sup>-5</sup>	0.14
DY	DY-165	2.32 h	94.6	2.96x10 <sup>-3</sup>	8.26x10 <sup>-4</sup>	3.58
Ho	Ho-166	26.9 h	80.6	1.55x10 <sup>-6</sup>	2.56x10 <sup>-4</sup>	0.006
Er	Er-171	7.52 h	111.6	1.94x10 <sup>-3</sup>	1.45x10 <sup>-2</sup>	0.13
Yb	Yb-169	31.8 d	197.8	3.60	2.76	1.30
	Yb-175	4.21 d	113.5	0.93	0.41	2.27
Lu	Lu-177	6.74 d	208.3	5.06x10 <sup>-2</sup>	5.82x10 <sup>-2</sup>	0.87

T A B L A 3-5 (cont.)

Elemento	Radionucleido	T <sub>1/2</sub>	Energía (KeV)	Limite detección Ge(Li) convencional ( $\mu\text{g}$ )	Limite detección Ge(Li) LEPS ( $\mu\text{g}$ )	figura de mérito
Hf	Hf-181	42.5 d	345.9	0.70	21.17	0.03
Ta	Ta-182	115.0 d	100.1	0.33	$2.72 \times 10^{-2}$	12.13
W	W-187	24.0 h	134.2	$9.69 \times 10^{-4}$	$5.07 \times 10^{-3}$	0.19
Re	Re-186	90.0 h	137.2	0.44	0.51	0.86
	Re-188	16.8 h	155.0	$7.83 \times 10^{-2}$	0.18	0.43
Os	Os-191	15.0 d	129.5	0.27	0.12	2.25
	Os-193	30.0 h	138.9	0.22	$9.96 \times 10^{-2}$	2.21
Ir	Ir-192	74.2 d	316.5	$8.91 \times 10^{-2}$	0.16	0.56
Pt	Pt-195 <sup>m</sup>	4.1 d	98.9	4.10	1.29	3.18
Pt	Pt-197	18.0 h	191.3	0.92	0.63	1.46
Hg	Hg-197	64.1 h	191.5	$7.43 \times 10^{-2}$	0.13	0.57
	Hg-197 <sup>m</sup>	23.8 h	133.9	$1.05 \times 10^{-2}$	0.10	0.33
Th	Pa-233	27.4 d	311.9	0.16	0.31	0.52



### 3.5. Estudio tentativo de la posible aplicación de los rayos X en análisis por activación neutrónica.

#### 3.5.1. Sensibilidades analíticas de elementos puros obtenidos experimentalmente mediante la medida de rayos X

Teóricamente de los elementos de la tabla periódica se pueden determinar, en un principio, 59 por espectrometría de rayos X de los productos de su activación con neutrones. Estos elementos producen, después de activación neutrónica, isótopos radiactivos que se desintegran con emisión de rayos X a través de los procesos citados anteriormente en el apartado 2.3. Los rayos X emitidos por elementos ligeros son muy poco energéticos por lo que es muy difícil medirlos cuantitativamente sin emplear precauciones especiales para disminuir su absorción, por lo que en la práctica la espectrometría de rayos X es aplicable únicamente a elementos pesados.

Sin embargo, no todos estos nucleidos pueden determinarse en las condiciones experimentales del presente estudio, ya que en algunos casos la intensidad de los rayos X es demasiado baja, mientras que -

en otros el radioisótopo tiene un periodo de semidesintegración demasiado corto. En el estudio, también hemos excluido los gases nobles como Ar, Kr y Xe que si bien potencialmente se pueden analizar por esta técnica, requieren el manejo especial de las muestras gaseosas. Se han estudiado, por lo tanto, los rayos X característicos de 33 elementos en las condiciones de irradiación y medida descritas en los apartados 3.3.2 y 3.3.3.

Los resultados obtenidos se muestran en la tabla 3-6 donde se han dispuesto los elementos en orden creciente de su número atómico. Los diferentes tipos de procesos que han originado la emisión de los rayos X característicos de los distintos elementos (47) aparecen reflejados en la columna 4 con las siguientes siglas (TI = transición isomérica seguida de conversión interna que conduce a los rayos X del elemento Z, CE = captura electrónica orbital que conduce a los rayos X del elemento Z-1 y  $\beta^-$  = desintegración  $\beta^-$  seguida de conversión interna que conduce a los rayos X del elemento Z + 1).

Para el calculo de sensibilidades se eligió en cada caso el rayo X de mayor intensidad. Sus energías correspondientes, expresadas en KeV, se muestran en la

penúltima columna donde también se indica entre paréntesis la línea característica seleccionada utilizándose en su designación la notación convencional de Siegbahn. Las sensibilidades se calcularon a partir del área total neta del pico proporcionada por el programa GAMMAS (45), para tiempos de irradiación de 10 horas y un flujo neutrónico de  $5 \times 10^{12}$  n/cm<sup>2</sup>.S y extrapolada a tiempo o después del final de la irradiación. A partir de la cantidad de cada elemento irradiada se calculó la actividad específica correspondiente a cada rayo X que se expresó en cuentas por minuto/microgramo. La relación entre el límite de detección cualitativo para la medida de la actividad en cuentas por minuto que proporciona el programa GAMMAS como se indicó en el apartado 3.3.4 y la actividad específica permite determinar la cantidad mínima detectable de cada elemento mediante la medida de dicho rayo X.

Si dos o más radioisótopos de un elemento se desintegran con emisión de rayos X diferentes las sensibilidades obtenidas para cada caso se indican también en la tabla.

SENSIBILIDADES ANALITICAS DE ELEMENTOS PUROS OBTENIDOS  
EXPERIMENTALMENTE MEDIANTE LA MEDIDA DE RAYOS X

Elemento	Radionucleido	T <sub>1/2</sub>	Desintegración	Rayos X medidos (Kev)	Sensibilidad (μg)
Br	Br-80 <sup>m</sup>	4.4 h	TI	(11.8+11.9)Br-Kα	0.34
Sr	Sr-87 <sup>m</sup>	2.806 h	TI	(14.1+14.2)Sr-Kα	0.90
Mo	Mo-99	66.2 h	β <sup>-</sup>	(19.1+193)Ru-Kα	5.62
Ru	Ru-97	2.88 d	CE	(18.2+18.4)Tc-Kα	0.49
	Ru-105	4.44 h	β <sup>-</sup>	(20.1+20.2)Rh-Kα	0.17
Pd	Pd-109	13.47 h	β <sup>-</sup>	(22.0+22.2) Ag-Kα	0.58
Cd	Cd-115	53.5 h	CE	(24.0+24.2) In-Kα	6.54
In	In-114 <sup>m</sup>	50.0 d	TI	(24.0+24.2) In-Kα	1.00
Te	Te-123 <sup>m</sup>	120.0 d	TI	(27.2+27.5)Te-Kα	22.03
	Te-131 <sup>m</sup>	30.0 h	TI	(27.2+27.5)Te-Kα	20.37
Cs	Cs-134 <sup>m</sup>	2.395h	TI	(30.6+31.0)Cs-Kα	0.03
Ba	Ba-131	11.5 d	CE	31.0 Cs-Kα <sub>1</sub>	0.52
Ce	Ce-141	32.38 d	β <sup>-</sup>	(35.5+36.0)Pr-Kα	0.35
	Ce-143	33.7 h	β <sup>-</sup>	(35.5+36.0)Pr-Kα	0.21
Nd	Nd-149	1.8 h	β <sup>-</sup>	38.7 Pm-Kα <sub>1</sub>	0.60
	Pm-151	27.8 h	β <sup>-</sup>	45.4 Sm-Kβ <sub>1</sub>	1.83
Sm	Sm-153	46.8 h	β <sup>-</sup>	(40.9+41.5)Eu-Kα	0.004
Eu	Eu-152	12.7a	CE	(39.5+40.1)Sm-Kα	0.12
Gd	Gd-153	242.0 d	CE	(40.9+41.5)Eu-Kα	11.73

Elemento	Radionucleido	T <sub>1/2</sub>	Desintegración	Rayos X medidos (Kev)	Sensibilidad (µg)
Gd	Gd-159	18.0 h	β <sup>-</sup>	(43.7+44.5) Tb-Kα	0.08
Tb	Tb-160	72.1 d	β <sup>-</sup>	(45.2+46.0) Dy-Kα	0.0004
Dy	Dy-165	2.32 h	β <sup>-</sup>	(46.7+47.5) Ho-Kα	0.0009
Ho	Ho-166	26.9 h	β <sup>-</sup>	(48.2+49.1) Er-Kα	0.0006
Er	Er-171	7.52 h	β <sup>-</sup>	50.7 Tm-Kα <sub>1</sub>	0.01
Tm	Tm-170	127.0 d	β <sup>-</sup>	52.4 Yb-Kα <sub>1</sub>	0.18
Yb	Yb-169	31.8 d	CE <sup>-</sup>	(49.8+50.7) Tm-Kα	0.70
	Yb-175	4.21 d	β <sup>-</sup>	54.1 Lu-Kα <sub>1</sub>	0.44
Lu	Lu-177	6.74 d	β <sup>-</sup>	55.8 Hf-Kα <sub>1</sub>	
Hf	Hf-175 <sup>m</sup>	70.0 d	CE <sup>-</sup>	54.1 Lu-Kα <sub>1</sub>	0.027
	Hf-180 <sup>m</sup>	5.5 d	TI <sup>-</sup>	(54.6+55.8) Hf-Kα	0.39
	Hf-181	42.5 d	β <sup>-</sup>	(56.3+57.5) Ta-Kα	0.17
Ta	Ta-182	115.0 d	β <sup>-</sup>	(58.0+59.3) W-Kα	0.03
W	W-187	24.0 h	β <sup>-</sup>	61.1 Re - Kα <sub>1</sub>	0.004
Re	Re-186	90.0 h	CE <sup>-</sup>	59.3 W - Kα <sub>1</sub>	1.61
	Re-188	16.8 h	β <sup>-</sup>	63.0 Os - Kα <sub>1</sub>	0.55
Os	Os-191	15.0 d	β <sup>-</sup>	64.9 Ir - Kα <sub>1</sub>	0.006
Ir	Ir-192	74.2 d	β <sup>-</sup>	66.8 Pt - Kα <sub>1</sub>	0.29
Pt	Pt-191	3.0 d	CE <sup>-</sup>	64.9 Ir-Kα <sub>1</sub>	0.64
	Pt-197	18.0 h	β <sup>-</sup>	68.8 Au-Kα <sub>1</sub>	0.53
	Au-199	3.15 d	β <sup>-</sup>	70.8 Hg-Kα <sub>1</sub>	0.44
Au	Au-198	2.697 d	β <sup>-</sup>	70.8 Hg-Kα <sub>1</sub>	0.89
Hg	Hg-197	64.1 h	CE <sup>-</sup>	58.8 Au-Kα <sub>1</sub>	0.01
Th	Pa-233	27.4 d	β <sup>-</sup>	98.4 U-Kα <sub>1</sub>	0.20

a) Kα = Kα<sub>1</sub> + Kα<sub>2</sub>

### 3.5.2. Estudio de las posibles interferencias

Se ha realizado el estudio de las posibles interferencias que pueden presentarse en la aplicación de la espectrometría de rayos X al análisis por activa -ción neutrónica. Este estudio comprende dos partes: - interferencias debidas a la presencia de emisores de rayos X y gamma en la producción de rayos X del nucleido radiactivo de interés presente en la misma matriz e interferencias debidas a la presencia de emisores ra -diactivos en la producción de rayos X de otros nucleidos estables presentes en la matriz.

#### 3.5.2.1. Influencia de la presencia de emisores radiac- tivos en la producción de rayos X del radionu- cleido de interés.

Se han realizado una serie de experiencias con - radionucleidos emisores de rayos X y fotones gamma de energías baja y media, para estudiar la posible influencia de su concentración, en la emisión de los rayos X producidos durante la desintegración radiactiva del ra-dionucleido de interés que se pretende determinar en la matriz.

En la tabla 3-7 se indican las características

# T A B L A 3-7

## CARACTERISTICAS FUNDAMENTALES DE LOS RADIOISOTOPOS UTILIZADOS EN EL ESTUDIO DE LAS INTERFERENCIAS

Elemento	Radionuclido	T <sub>1/2</sub>	Energia (KeV)
Cromo	Cr - 51	27.8 d	320.1
Terbio	Tb - 160	72.1 d	(45.2 + 46.0) Dy-K $\alpha$ 52.1 Dy-K $\beta$ 1. 53.5 Dy-K $\beta$ 2 86.8 197.0 215.6 298.5 309.5 392.4
Tántalo	Ta. 182	115.0 d	(58.0 + 59.3) W-K $\alpha$ 65.7 67.2 W-K $\beta$ 1 84.7 100.1 113.7 116.4 152.4 156.4 179.4 198.3 222.1 229.3 264.1

fundamentales de los radioisótopos utilizados en este estudio Cr-51, Tb-160 y Ta-182 tales como su periodo de semidesintegración y las energías de sus rayos X y gamma.

El metodo experimental empleado fué el siguiente. Se prepararon dos series de muestras:

La primera formada por cinco muestras con actividades crecientes de Tb-160 (emisor de rayos X y gamma de energías bajas y medias) en relación: 1,2,4,8 y 16 y una actividad constante de Ta-182.

La segunda serie consistió en cinco muestras con la misma actividad de Ta-182 en cantidad constante para utilizarla como referencia.

De cada una de estas dos series se tomaron espectros a diferentes tiempos de desintegración, con el detector LEPS, en una geometría constante con un volumen normalizado de  $40 \text{ cm}^3$  en contacto con el detector. Con los datos de la actividad correspondiente a la línea característica  $W-K\beta_1$  emitida durante la desintegración  $\beta^-$  del Ta-182 (que es el rayo X seleccionado) se ha estudiado la influencia de la actividad de Tb-160 en la producción de rayos X del Ta-182.



Los resultados obtenidos para la medida de la actividad de los rayos X del Ta-182 vienen indicados en la tabla 3-8.

Se ha procedido al estudio estadístico de los resultados de las dos series mediante la comparación de las medias de ambas series aplicando la prueba t de Student. Previamente se ha realizado una depuración de los resultados experimentales rechazando los valores extremos mediante la aplicación del criterio de Chauvenet, y se ha comprobado que ambas series de datos presentan la misma varianza mediante una prueba F (48). Los resultados de este estudio vienen en la tabla 3-9 y muestran que las medias de ambas series de datos son esencialmente iguales, lo que indica que la presencia de Tb-160 en cantidades apreciables no ejerce influencia en la actividad del rayo X del Ta-182.

Posteriormente se procedió a un experimento - análogo al descrito anteriormente pero utilizando - como emisor radiactivo una solución de Cr-51 que tiene un único rayo gamma de 320.0KeV. y que se preparó por irradiación de cromo metal en el tubo vertical - oeste del reactor JEN-1 durante 10 horas. Después de un periodo de enfriamiento el patrón irradiado se di

T A B L A 3-8

ACTIVIDADES EXPERIMENTALES CORRESPONDIENTES AL RAYO W-K $\beta_1$   
 EMITIDO DURANTE LA DESINTEGRACION  $\beta^-$  DEL Ta-182

Número de muestra	Actividad 1ª serie (Ta-182 fijo + Tb-160 variable) (cpm)				
1	2032.40	2024.26	2000.90	1914.40	1927.80
2	1826.54	1939.42	1802.00	1726.25	2004.59
3	1893.20	1970.66	1765.37	1813.01	2045.00
4	1869.13	2054.67	1592.06	1862.45	2077.56
5	1937.99	1975.30	1910.54	1814.19	2125.72

Número de muestra	Actividad 2ª serie (Ta-182 fijo) (cpm)				
1	2062.35	1989.74	1840.32	1977.55	2080.91
2	1909.58	1918.58	1843.11	1852.39	1907.21
3	1905.34	1946.02	1799.79	1720.44	1863.08
4	1936.00	2007.73	1937.64	1919.01	1990.79
5	2009.67	2002.88	1935.42	1913.92	1973.3

T. A B L A 3-9

TRATAMIENTO ESTADISTICO DE LAS ACTIVIDADES EXPERIMENTALES OBTENIDAS EN EL

ESTUDIO DE LA INFLUENCIA DEL Tb-160 EN LA PRODUCCION DE RAYO X DEL Ta-182

	Valor medio	Grados de libertad (N-1)	Varianza (S <sup>2</sup> )	Razon de varianza (F)	"F" teoricos max 99% min 95%	Observaciones
Ta-182 fijo + Tb-160 variable	1916.34	23	11112.95	1.68	1.99 2.70	No existe diferencia significativa entre las dos series de datos
			6616.16			
Ta-182 fijo	1929.71	24				

T A B L A 3-9 (cont.)

	Valor medio	Grados de libertad (N-1)	Varianza (s <sup>2</sup> )	Prueba "t"	"t" teoricos max 99% min 95%	Observaciones
Ta-182 fijo + Tb-160 variable	1916.34	23	11112.96	1.8.10 <sup>-4</sup>	2.576 1.960	Las dos medias son esencial - mente iguales
	1929.71	24	6616.16			

solvió en HCl concentrado y con la solución resultante se prepararon dos series de muestras: una primera serie de muestras con actividades crecientes de Cr-51 y actividad fija de Ta-182 y una segunda serie con la misma actividad constante de Ta-182 como referencia.

Los valores de las actividades medidas correspondientes al rayo X seleccionado del Ta-182 para el estudio de la influencia del Cr-51 en la emisión de dicho rayo X se indica en la tabla 3-10. De nuevo el estudio estadístico de los valores obtenidos para las dos series de datos (tabla 3-11) arrojó el resultado de que los valores medios de ambas series eran esencialmente iguales, lo que significa que la actividad de Cr-51 en las cantidades añadidas no ejerce influencia apreciable en la producción del rayo X del Ta-182.

#### 3.5.2.2. Influencia de la presencia de emisores radiactivos en la producción de rayos X de otros nucleidos estables.

Otro tipo de posible interferencia puede ocurrir cuando un elemento estable se encuentra en la matriz analizada en una concentración elevada, de tal forma, que la actividad de los radionucleidos presentes en la muestra puede producir los rayos X de este elemen-

T A B L A 3-10

ACTIVIDADES EXPERIMENTALES CORRESPONDIENTES AL RAYO  $W-K\beta_1$   
 EMITIDO DURANTE LA DESINTEGRACION  $\beta^-$  DEL Ta-182

Número de muestra	Actividad 1ª serie (Ta-182 fijo + Cr-51 variable) (cpm)				
1	2686.09	2691.06	2614.94	2604.94	2747.60
2	2640.47	2721.87	2630.28	2585.13	2735.43
3	2601.72	2692.16	2601.42	2557.64	2670.21
4	2575.97	2619.89	2547.74	2557.20	2451.62
5	2372.19	2461.75	2380.27	2358.64	2520.87

Número de muestra	Actividad 2ª serie (Ta-182 fijo) (cpm)				
1	3105.88	2682.71	2651.99	2782.49	2763.65
2	3086.42	2708.80	2657.23	2776.29	2751.03
3	3061.22	2667.04	2644.47	2783.00	2722.60
4	2990.42	2586.18	2577.56	2714.45	2688.05
5	2808.79	2464.70	2425.23	2541.50	2447.99

T A B L A 3-11

TRATAMIENTO ESTADISTICO DE LAS ACTIVIDADES EXPERIMENTALES OBTENIDAS EN EL  
ESTUDIO DE LA INFLUENCIA DE Cr-51 EN LA PRODUCCION DEL RAYO X DEL Ta-182

	Valor medio	Grados de libertad (N-1)	Varianza (S <sup>2</sup> )	Razón de varianzas (F)	F teoricos		Observaciones
					max 99%	min 95%	
Ta-182 fijo + Cr-51 variable	2634.58	18	4102.40	1.03	3.23	2.27	No existe diferencia significativa en la precisión de las dos series de datos
	2697.35	15	4236.39				

T A B L A 3-11 (cont.)

	Valor medio	Grados de libertad (N-1)	Varianza (S <sup>2</sup> )	Prueba "t"	"t" teoricos	Observaciones
Ta-182 fijo + Cr-51 variable	2634.58	18	4102.40	0.13	2.575 1.960	Los dos medios son esencial- mente iguales
	2697.35	15	4236.39			



to, y si estas coinciden con los rayos X característicos, emitidos durante la desintegración del radionucleido de interés, puede dar lugar a errores en la medida de la actividad de dichos rayos X.

Para determinar la concentración del elemento a la que empiezan a aparecer este tipo de interferencias se eligió como emisor gamma una solución de cabalto-60 como fuente radiactiva para la realización del experimento. Como elementos estables se eligieron erbio, wolframio y mercurio.

El experimento llevado a cabo consistió en primer lugar en la preparación, para cada elemento estable seleccionado, de cinco muestras, con una actividad de Co-60 adecuada, y concentraciones crecientes del nucleido estable en cada caso, que aparecen indicadas en la columna 4 de la tabla 3-12. La actividad de las soluciones así preparadas se midió en el detector LEPS en una geometría constante de envases tipo "duquesa" con un volumen normalizado de  $40 \text{ cm}^3$  en contacto con el detector. Los resultados de las medidas aparecen reflejados en la tabla 3-12 donde junto a cada elemento estable se ha especificado su rayo X medido, así como la actividad específica correspondiente a dicho rayo X que se produciría en la activa

## INFLUENCIA DE LA PRESENCIA DE EMISORES RADIACTIVOS EN

## LA PRODUCCION DE RAYOS X DE OTROS NUCLEIDOS ESTABLES

Nucleido estable	Energía (Kev)	Actividad específica (cpm/ $\mu$ g)	Concen- tración ( $\mu$ g)	Actividad medida (cpm)	Interferencia %
Erbio	(48.2+49.1)Er-K $\alpha$ 113584.07		1013	---	---
			2530	2.9	1.01x10 <sup>-6</sup>
			5060	5.9	1.03x10 <sup>-6</sup>
			10118	13.5	1.17x10 <sup>-6</sup>
			20235	32.4	1.41x10 <sup>-6</sup>
Wolframo	(58.0+59.3)W-K $\alpha$ 1459.08 (*)		1002	2.8	1.91x10 <sup>-4</sup>
			2502	5.7	1.95x10 <sup>-4</sup>
			5007	15.0	2.05x10 <sup>-4</sup>
			10015	40.6	2.78x10 <sup>-4</sup>
			20030	101.5	3.47x10 <sup>-4</sup>
			1002	7.3	1.59x10 <sup>-4</sup>
			2502	19.2	1.68x10 <sup>-4</sup>
			5007	39.7	1.73x10 <sup>-4</sup>
			10015	80.9	1.76x10 <sup>-4</sup>
			20030	202.2	2.21x10 <sup>-4</sup>
(58.0+59.3)W-K $\alpha$ 116.60 (**)		1002	2.8	2.40x10 <sup>-3</sup>	
		2502	8.1	2.78x10 <sup>-3</sup>	

T A B L A 3-12 (cont.)

Nucleido estable	Energía (Kev)	Actividad específica (cpm/ $\mu$ g)	Concen- tración ( $\mu$ g)	Actividad medida (cpm)	Interferencia %
Wolframo	(58.0+59.3)W-K $\alpha$	116.60	5007	18.0	$3.08 \times 10^{-3}$
			10015	41.2	$3.53 \times 10^{-3}$
			20030	88.0	$3.77 \times 10^{-3}$
	67.2(W-K $\beta_1$ )	40.19	1002	7.3	$1.81 \times 10^{-2}$
			2502	18.8	$1.87 \times 10^{-2}$
			5007	38.7	$1.92 \times 10^{-2}$
Mercurio	70.8(Hg-K $\alpha$ )	22.15	10015	80.9	$2.01 \times 10^{-2}$
			20030	202.2	$2.51 \times 10^{-2}$
			1002	---	----
			2502	---	----
			5007	3.8	$3.43 \times 10^{-3}$
			10015	14.07	$6.34 \times 10^{-3}$
			20030	33.8	$7.62 \times 10^{-3}$

(\*) Actividad específica correspondiente a los rayos X del wolframio emitidos durante la desintegración del Ta-182 por emisión  $\beta^-$  seguida de conversión interna.

(\*\*) Actividad específica correspondiente a los rayos X del wolframio emitidos durante la desintegración del Re-186 por captura electrónica orbital.

ción con neutrones (que se conoce experimentalmente a partir de la colección de espectros gamma de elementos puros obtenida con el mismo detector para una irradiación normalizada de 10 horas), las concentraciones de cada muestra estudiada y las actividades correspondientes medidas en el detector LEPS. La última columna de la tabla expresa el tanto por ciento de interferencia producido para cada concentración, sobre la actividad total, que se produciría en la activación con neutrones de dicho rayo X.

De la observación de la tabla 3-12 se deduce - que si un elemento está presente en cualquier tipo de matriz, en una concentración inferior a 5 mg/ml, las interferencias causadas por la producción de sus rayos X son inferiores al  $2.5 \times 10^{-2}$  % cualquiera que sea la actividad.

Como conclusión podemos decir que este tipo de interferencias solo tendrán un valor significativo en aquellos casos en que la actividad específica correspondiente al rayo X producido por efecto de la concentración del elemento en la matriz sea del mismo orden que la actividad inducida por la radiación gamma de otro radionucleido y solo en el caso de que la cantidad de radiación gamma bombardeante tenga un

valor elevado, lo cual no es posible que ocurra en la practica normal de laboratorio, ya que saturaría el analizador.

### 3.5.3. Posibles errores en la medida de la actividad debidos a absorción de rayos X por distinta densidad de las muestras.

En el espectro de energías de la radiación gamma y X, los fenómenos de absorción de radiación debidos a las variaciones de densidad de las muestras pueden empezar a acusarse a energías inferiores a 150 KeV ya que son despreciables para radiaciones de energías superiores.

En la región de rayos X las variaciones del coeficiente de absorción másico,  $\mu/\rho$ , que expresa la absorción por unidad de masa atravesada, dependen de la longitud de onda de la radiación incidente y del número atómico de la sustancia absorbente (49). Por consiguiente hay que tener en cuenta, las variaciones de composición entre muestras o entre muestra y comparador, que impliquen elementos de elevado número atómico o elementos cuya discontinuidad de absorción sea inferior a la energia del rayo X considerado ya que en este caso las ra-

diaciones serían muy fuertemente absorbidas. El coe  
ficiente de absorción cambia en un factor de 10 en el  
borde K (50).

El estudio experimental de la magnitud de -  
error en la medida de actividad causada por las dife  
rencias en la densidad de las muestras se ha realizado  
mediante una serie de radiosótopos, emisores de -  
rayos X y gamma de energías comprendidas entre 30 y  
150 KeV, que se prepararon por irradiación con neu-  
trones térmicos, a partir de sus correspondientes --  
elementos puros, en el reactor nuclear JEN-1.

Dado que un estudio completo de la absorción -  
de la radiación X, en función de la energía del rayo  
X y de la densidad de la muestra, hubiese sido dema-  
siado complicado por el número de parámetros a considerar,  
se decidió comprobar únicamente las variaciones  
correspondientes a dos situaciones límites. Por  
consiguiente, muestras de actividad adecuada de los  
trazadores elegidos, dispersas en dos densidades di-  
ferentes, en forma líquida y en un soporte constituido  
por un mineral con un 20% de hierro, se midieron  
en el detector LEPS.

En la tabla 3.13 se indican las características nucleares de los radionucleidos utilizados junto con las energías de las radiaciones seleccionadas para este estudio.

En las columnas 3 y 4 se señalan los valores medios de las actividades medidas con nuestro detector, en las dos densidades (mineral y líquida), y en la última fila la relación entre las actividades correspondientes a las dos densidades estudiadas.

Como se observa en la gráfica de las figura 3-4 obtenida de la representación de la variación de las actividades medidas en ambas densidades en función de la energía de la radiación, la diferencia en actividad expresada en tanto por ciento referida a la del líquido es del 50% para energías inferiores a 40 KeV mientras que para radiaciones de energía superior a 100 KeV es de un 10%.

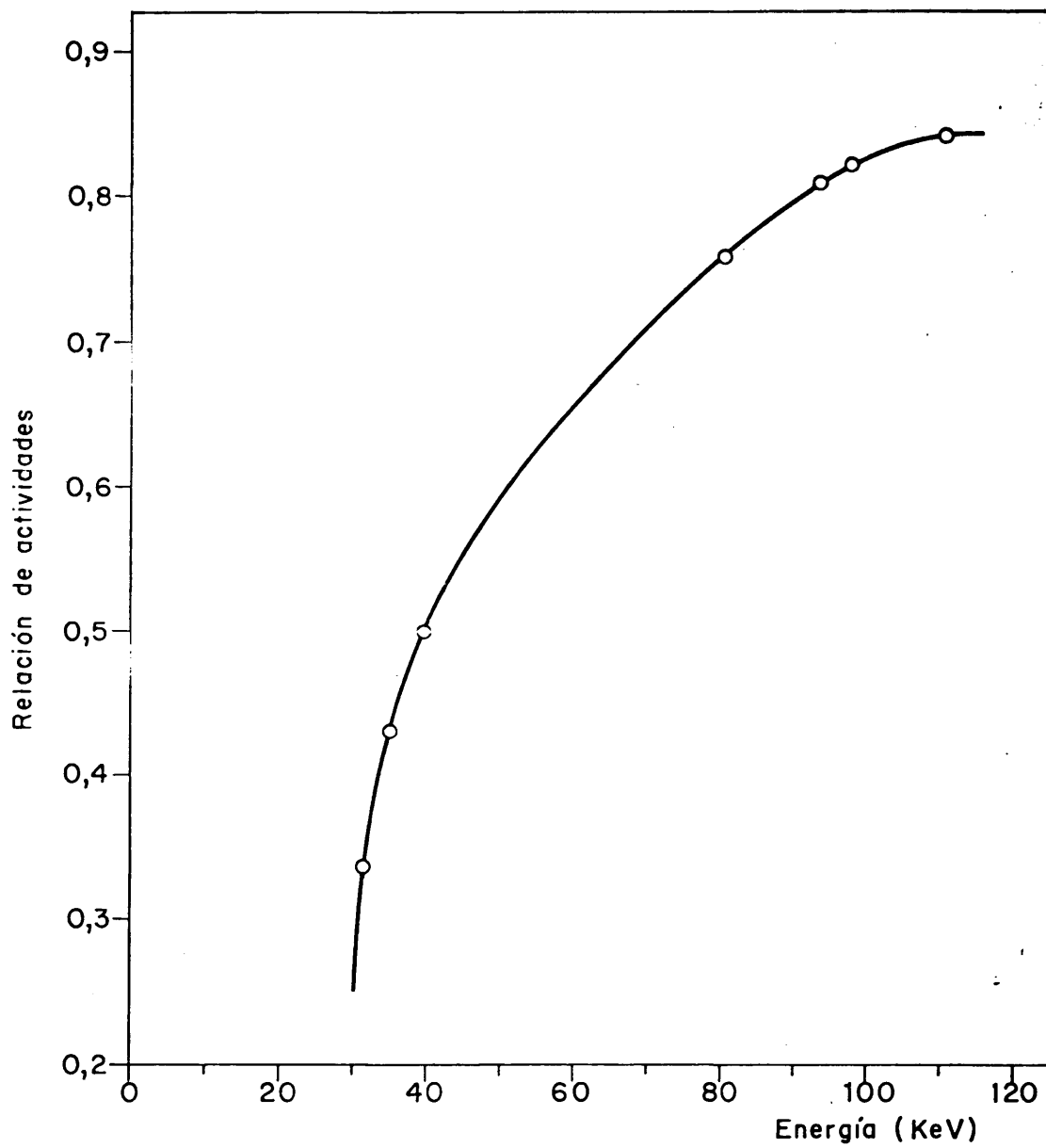
En consecuencia, aunque la geometría de medida es un problema general de la espectrometría ~~de rayos X y de la espectrometría gamma, los efectos~~ de autoabsorción necesitan especial atención cuando se trata de radiaciones de baja energía. En

T A B L A 3-13

INFLUENCIA DE LA DIERENCIA DE DENSIDAD EN LA MEDIDA DE LA ACTIVIDAD

Emisor	$T_{1/2}$	Energia (Kev)	Actividad (mineral) (cpm)	Actividad liquia (cpm)	Relación de actividades
Ba-133	7.2 a	31.0(Cs-K $\alpha_1$ )	28066.01	84074.92	0.33
		35.0(Cs-K $\beta_1$ )	8532.77	19843.66	0.43
		80.8	18437.58	24259.97	0.76
Gd-153	242 d	(40.9+41.5)Eu-K $\alpha$	384.20	762.37	0.50
Pa-233	27 d	94.6(U-K $\alpha_2$ )	525.59	653.72	0.81
		98.4(U-K $\alpha_1$ )	785.97	958.50	0.82
		111.3(U-K $\beta_1$ )	212.34	252.19	0.84





**Figura 3-4.**  
**Variación en la medida de la actividad debida a la densidad.**

el análisis de rocas y minerales es posible evitar las diferencias de atenuación de la radiación --- entre muestras y comparadores, si se utiliza como comparador una roca patrón apropiada de composición química y densidad muy similares a las muestras.

En algunos casos ha sido posible obtener - fuentes de la misma forma geométrica y la misma - intensidad. Bhatt y Townshend (51) solucionaron - este problema en un análisis no destructivo de rocas homogeneizando una mezcla de polvo de roca y grafito como soporte y seleccionando el tiempo de mezcla a partir del estudio de las condiciones - óptimas para mezclar dos componentes realizado por Starkheev y Kurnetsov (52).

Sin embargo las variaciones en la densidad crean problemas que se pueden evitar difícilmente y conducen a la necesidad de efectuar correcciones preparando curvas de autoabsorción en cada - caso.

### 3.6. Aplicación de los rayos X y fotones de baja energía al análisis por activación neutrónica no destructivo de rocas.

Como caso demostrativo de la aplicación de los rayos X y fotones de baja energía al análisis por activación neutrónica se ha realizado un análisis comparativo con ambos tipos de detectores de la roca patrón G-2 del U.S. Geological Survey.

Una muestra de la roca patrón G-2 con un peso aproximado de 1.025 g. junto con soluciones patrón de varios elementos, cuyas concentraciones correspondientes se indican en la tabla 3-14, fueron irradiadas encapsuladas en viales de poletileno en el reactor nuclear JEN-1. El dispositivo de irradiación utilizado fué el tubo vertical donde el flujo neutrónico es aproximadamente  $5 \times 10^{11} \text{ n. cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ . El tiempo de irradiación fué de una semana y se escogieron tiempos de enfriamiento superiores a 10 días para evitar las interferencias de aquellos radionucleidos con periodos de semidesintegración cortos que pueden enmascarar el resto de las actividades los primeros días después de la irradiación.

Para conocer las variaciones de flujo neutrónico recibidas por las muestras y patrones se empleó como -

## T A B L A 3-14

## CONCENTRACION DE LAS SOLUCIONES PATRON

---

Elemento	Concentración ( $\mu\text{g}$ elemento/ml solución)
Tb	77.1
Yb	44.3
Eu	26.8
Lu	20.0
Nd	159.8
Cr	581.2
Th	87.8
Ba	698.8
Hf	847.0
Ce	1416.0
Ta	2996.0
Fe	99942.0

---

monitor de flujo neutrónico una aleación de cobalto-aluminio en forma de láminas metálicas adosadas a ambos - extremos de la muestra, cuya activación es proporcional al flujo neutrónico recibido por lo que la medida relativa de la actividad inducida en los monitores permite -- obtener directamente la relación de los flujos recibidos por las muestras y patrones correspondientes.

Después de la irradiación, la muestra y 1ml de cada solución patrón fueron transferidos a viales de polietileno limpios. Las muestras y comparadores se midieron en la misma geometría para obtener sus espectros gamma.

En la espectrometría gamma se utilizaron simulta-  
neamente dos detectores de Ge(Li):

- Detector de Ge(Li), LEPS, ORTEC modelo 80 13-25400 tipo plano de  $3 \text{ cm}^3$  de volumen activo con un poder de resolución de 0.817 KeV para el pico de 122.1 KeV del Co-57.
- Detector de Ge(Li), Nuclear Enterprises, tipo coaxial de  $40 \text{ cm}^3$  de volumen activo con un poder de resolución teórico de 3.5 KeV para el pico de 1332.3 KeV del - Co-60.

En cada caso las señales procedentes del detector se amplificaron mediante un preamplificador de impulsos

sensible a la carga y un amplificador lineal ORTEC modelo 450, con constantes de tiempo de formación de impulsos, diferenciación e integración ajustables, cuyos valores óptimos seleccionados fueron en ambos casos 2  $\mu$ s respectivamente. Los impulsos del amplificador se analizaron y almacenaron en un analizador multicanal Hewlett - Packard de 4096 canales.

En todas las medidas realizadas se procedió a la representación del contenido de la memoria del analizador mediante un registro gráfico X-Y Hewlett - Packard. El espectro gamma de bajas energías de la roca G-2 tomado con el detector LEPS aparece representado en las figuras 3-5a y 3-5b que corresponden a los márgenes de energías de 0 a 200 KeV y de 200 a 400 KeV respectivamente para una mejor visualización del espectro. La figura 3-6 corresponde al espectro de la misma muestra tomado con el detector de Ge(Li) convencional en el intervalo de energías de 0 a 400 KeV común a ambos tipos de detectores.

La calibración de ambos sistemas se llevo a cabo en el caso del detector convencional con emisores de radiación gamma de energías adecuadas para cubrir el intervalo de 0 a 2000 KeV tales como Co-60 (1173.2 y 1332.5 KeV), Cs-137 (661.6 KeV) y Mn-54 (834.8 KeV). Con el detector

LEPS el sistema se calibró con Ta-182 emisor de fotones y rayos X que cubren el margen de energías gamma desde 58 KeV hasta 300 KeV.

Para la identificación y cálculo automático de las energías y de las áreas netas de los picos se ha utilizado el programa GAMMAS (45). Para la identificación de los radionucleidos emisores de los rayos gamma se han utilizado diferentes compilaciones de energías gamma -- especialmente las realizadas por Crouthamel (53), Dams y Adams (54) y Erdtmann y Soyka (55,56). Las energías asignadas en nuestro caso han sido tomadas de Erdtmann y Soyka (55,56) mientras que las energías correspondientes a los rayos X han sido tomadas de Bearden (57).

Las figuras 3-5a y 3-5b indican el espectro gamma de la roca G-2 obtenido mediante el detector LEPS diez días después del final de la irradiación. En dichas figuras debido a la enorme aglomeración de picos existente especialmente en la zona de energías por debajo de 150 KeV, a cada pico se le ha asignado un número. La relación de energías correspondientes a cada uno de dichos picos numerados aparece en la tabla 3-15 donde junto a cada pico se indican los radionucleidos asignados con las energías de las radiaciones correspondientes expresadas en KeV.

500 K

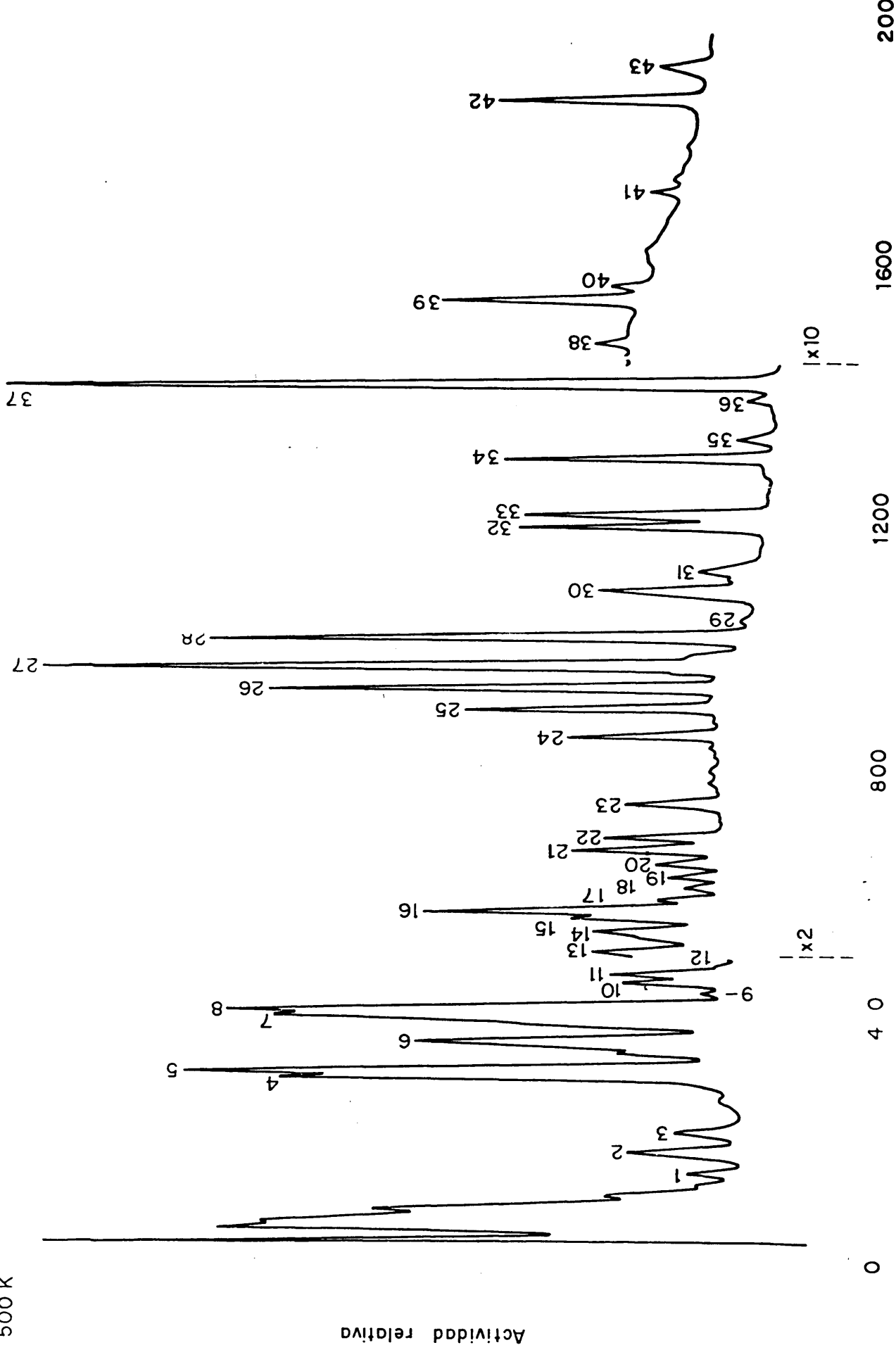


Figura 3-5a.

Roca G-2. Detector Ge (Li) LEPS. Irradiación = 1 semana. Desintegración = 10 d. Medida = 1610.40 min. 0 a 200 KeV.



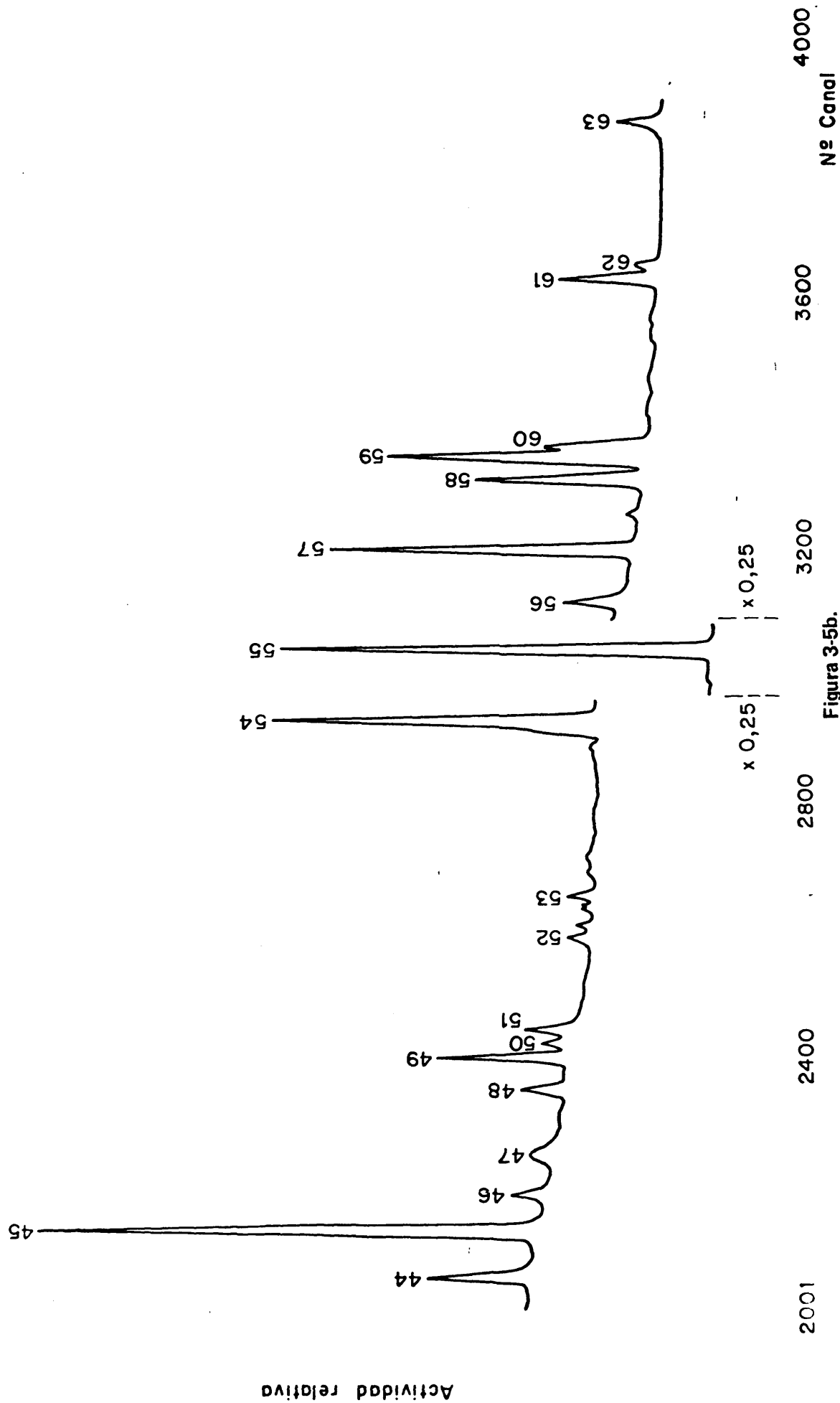


Figura 3-5b.

Roca G-2. Detector Ge (Li) LEPS. Irradiación = 1 semana. Desintegración = 10 d. Medida = 1610.40 min. 200 a 400 KeV

# T A B L A 3-15

ESPECTRO DE RAYOS X Y FOTONES DE BAJA ENERGIA TOMADO CON EL DETECTOR  
LEPS 10 DIAS DESPUES DE LA IRRADIACION (1 MG MUESTRA, IRRADIADO DURAN  
TE 10 H. EN UN FLUJO DE  $5 \times 10^{11} \text{ n.cm}^{-2}\text{-s}^{-1}$ , TIEMPO DE MEDIDA 1610.40 m)

---

1. Pa-233 (U-L<sub>III</sub> $\alpha_2$  : 13.4)
2. Pa-233 (U-L<sub>I</sub> $\beta_3$  : 17.4)
3. Pa-233 (U-L<sub>I</sub> $\gamma_2$  : 20.5)
4. Ba-131 (Cs-K $\alpha_2$  : 30.6)
5. Ba-131 (Cs-K $\alpha_1$  : 31.0)
6. Ba-131 (Cs-K $\beta_1$  : 35.0 + Cs-K $\beta_2$  : 35.8) + Ce-141 (Pr-K $\alpha_2$ :35.5 + Pr-K $\alpha_1$  :  
:36.0)
7. Eu-152 (Sm-K $\alpha_2$  : 39.5 + Sm-K $\alpha_1$  : 40.1)
8. Ce-141 (Pr-K $\beta_1$  : 40.7) + Eu-155 (40.9)
9. Eu-152 (Gd-K $\alpha_2$  : 42.3 + Gd-K $\alpha_1$  : 43.0) + Nd-147 (43.8)
10. Eu-152 (Sm-K $\beta_1$  : 45.4) + Tb-160 (Dy-K $\alpha_2$  : 45.2)
11. Eu-152 (Sm-K $\beta_2$  : 46.6) + Tb-160 (Dy-K $\alpha_1$  : 46.0)
12. Eu-152 (Gd-K $\beta_1$  : 48.7)

T A B L A 3-15 (Cont.)

13. Eu-152 (Gd-K $\beta_2$  : 49.9) + Yb-169 (Tm-K $\alpha_2$  : 49.8 + Tm-K $\alpha_1$  : 50.7)
14. Hf-175 (Lu-K $\alpha_1$  : 54.7) + Lu-177 (Hf-K $\alpha_2$  : 54.6 + Hf-K $\alpha_1$  : 55.8)
15. Hf-181 (Ta-K $\alpha_2$  : 56.3)
16. Hf-181 (Ta-K $\alpha_1$  : 57.5) + Ta-182 (W-K $\alpha_2$  : 58.0) + Yb-169 (Tm-K $\beta_1$  : 57.5)
17. Yb-169 (Tm-K $\beta_2$  : 59.1) + Ta-182 (W-K $\alpha_1$  : 59.3)
18. Hf-175 (Lu-K $\beta_1$  : 61.3)
19. Yb-169 (63.5) + Hf-175 (Lu-K $\beta_2$  : 63.0) + Lu-177 (Hf-K $\beta_1$  : 63.2)
20. Ta-182 (65.7) + Hf-181 (Ta-K $\beta_1$  : 65.2)
21. Ta-182 (67.7 + W-K $\beta_1$  : 67.2)
22. Ta-182 (W-K $\beta_2$  : 69.1) + Au-199 (Hg-K $\alpha_2$  : 68.9)
23. Pa-233 (75.3)
24. Tb-160 (86.8) + Pa-233 (86.6)
25. Nd-147 (91.1)
26. Yb-169 (93.6) + Tb-160 (93.9) + Pa-233 (U-K $\alpha_2$  : 94.7)
27. Pa-233 (U-K $\alpha_1$  : 98.4) + Ta-182 (100.1)
28. Pa-233 (103.9)
29. Eu-155 (105.3)
30. Pa-233 (U-K $\beta_3$  : 110.4 + U-K $\beta_1$  : 111.3) + Yb-169 (110.0)
31. Lu-177 (113.0) + Pa-233 (U-K $\beta_2$  : 114.5)

T A B L A 3-15 (Cont.)

32. Eu-152 (121.8)
33. Ba-131 (123.7) + Eu-154 (123.1)
34. Hf-181 (133.0) + Ba-131 (133.5)
35. Hf-181 (136.2 + 136.9)
36. Fe-59 (142.5)
37. Ce-141 (145.4) + Pa-233 (145.4)
38. Ta-182 (152.4)
39. Au-199 (158.4)
40. Sc-47 (159.4)
41. Yb-169 (177.0)
42. Fe-59 (192.5)
43. Yb-169 (197.8) + Tb-160 (197.0) + Ta-182 (198.3)
44. Au-199 (208.2) + Lu-177 (208.3)
45. Ba-131 (216.0) + Tb-160 (215.6)
46. Ta-182 (222.1)
47. Ta-182 (229.3) + Hf-175 (229.5)
48. Ba-131 (239.6)
49. Eu-152 (244.7)

T A B L A 3-15 (Cont.)

50. Ba-131 (246.8)
51. Ba-131 (249.4)
52. Ta-182 (264.1)
53. Pa-233 (271.5) + Eu-152 (271.0)
54. Pa-233 (300.1) + Tb-160 (298.5)
55. Pa-233 (311.9)
56. Cr-51 (320.1) + Nd-147 (319.4)
57. Eu-152 (329.0)
58. Pa-233 (340.5)
59. Eu-153 (344.3)
60. Hf-181 (345.9)
61. Ba-131 (373.1)
62. Pa-233 (375.4)
63. Pa-233 (398.5)

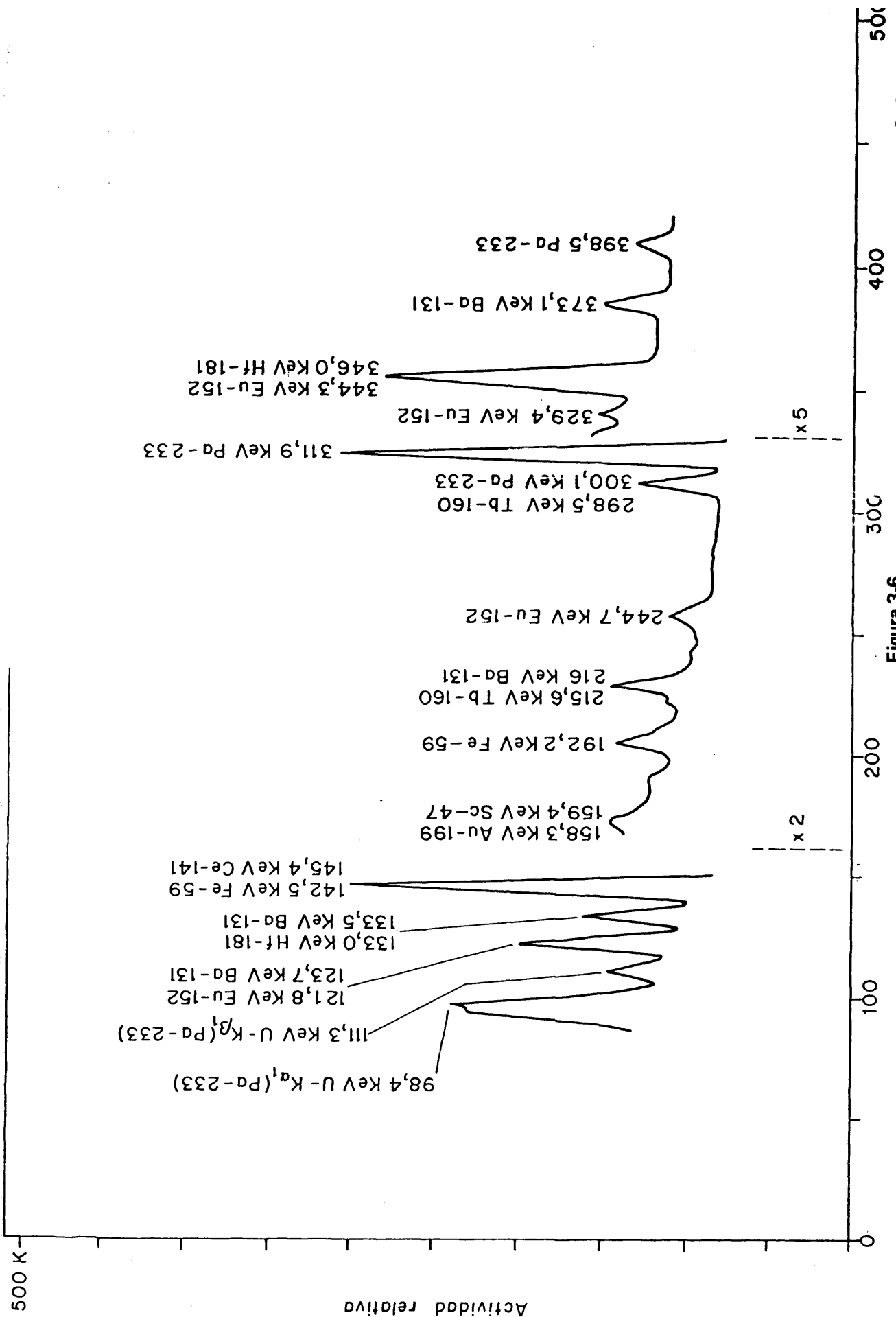


Figura 3-6.

Roca G-2. Detector Ge (Li) convencional. Irradiación = 1 semana. Desintegración = 10 d. Medida = 500 min. 0 a 500 KeV.

En la figura 3-6 correspondiente al espectro gamma de la roca G-2, obtenido mediante el detector de Ge(Li) convencional diez días después del final de la irradiación, se observa que con este tipo de detector no existen tantos picos a energías inferiores a 150 KeV, debido a su menor poder de resolución, y no se puede detectar ninguno por debajo de 100 KeV.

En la tabla 3-16 se indican las posibles interferencias de los radionucleidos identificados en los espectros gamma obtenidos con ambos tipos de detectores de Ge(Li), de la roca G-2 activada con neutrones térmicos, en el intervalo de 0 a 400 KeV. En la columna 3 se indican las interferencias presentes en el espectro gamma obtenido mediante el detector LEPS mientras que en la columna 4 se señalan aquellas interferencias que, además de reflejadas en la columna 3, se presentan en el espectro gamma del detector convencional.

Además en la tabla 3-16 se han subrayado aquellos picos con intensidad suficiente, para utilizarlos en la determinación cuantitativa de los elementos presentes en dicha roca. Asimismo se han subrayado aquellas energías que tienen más probabilidad de producir interferencias debido a la abundancia de las mismas.

TABLA 3-16

INTERFERENCIAS ESPECTRALES EN LOS ESPECTROS GAMMA DE

LA ROCA PATRON G-2 PARA ENERGIAS INFERIORES A 400 KeV

Radionucleido	Energia (KeV)	Interferencias Detector LEPS	Interferencias adicionales Detector convencional
Sc-47 (3.40 d)	159.4	-----	Au-199 (158.3)
Cr-51 (27.8 d)	*320.1	Nd-147 (319.4)	-----
Fe-59 (44.6 d)	<u>142.5</u>	-----	<u>Ce-141 (145.4)</u>
	<u>192.5</u>	-----	Tb-160 (197.0) + Yb-169 (197.8)
Ba-131 (11.5 d)	*30.6 Cs-K $\alpha_2$	-----	-----
	(35.0+35.8)Cs-K $\beta_1$ +Cs-K $\beta_2$	Ce141 (Pr-K $\alpha_2$ : 35.5 + +Pr-K $\alpha_1$ : 36.0)	-----
	<u>123.7</u>	Eu-154 (123.1)	<u>Eu-152 (121.8)</u>
	<u>133.5</u>	Hf-181 (133.0)	-----
	<u>216.0</u>	<u>Tb-160 (215.6)</u>	-----
	239.6	-----	Ba-131 (246.8 + 249.4) + + Eu-152 (244.7)



TABLA 3-16 (cont.)

Radionucleido	Energia (Kev)	Interferencias Detector LEPS	Interferencias adicionales Detector convencional
Ba-131(11.5 d)	246.8	-----	Ba-131(239.6 + 249.4) + + Eu-152(244.7)
	249.4	-----	Ba-131(239.6 + 246.8) + + Eu-152(244.7)
	373.1	-----	Pa-233(375.4)
Ce-141(32.38 d)	*(35.5 + 36.0)Pr-K $\alpha$	Ba-131(Cs-K $\beta_1$ :35.0+ + Cs-K $\beta_2$ :35.8)	-----
	*40.7 Pr-K $\beta_1$	Eu-155(40.9)	-----
	<u>145.4</u>	Pa-233(145.4)	<u>Fe-59 (142.5)</u>
Nd-147(11.06 d)	*43.8	Eu-152(Gd-K $\alpha_2$ :42.3+ Gd-K $\alpha_1$ :43.0)	-----
	91.1	-----	Tb-160(86.8)+Pa-233(86.6 + +103.9+U-K $\alpha_1$ : 98.4+U-K $\alpha_2$ :94.7)
	319.4	Cr-51(320.1)	-----
Eu-152(12.7 a)	*(39.5+40.1)Sm-K $\alpha$	-----	-----
	*(42.3+43.0)Gd-K $\alpha$	Nd-147(43.8)	-----

TABLA 3-16 (cont.)

Radionucleido	Energia (Kev)	Interferencias Detector LEPS	Interferencias adicionales Detector convencional
Eu-152(12.7 a)	*45.4 Sm-K $\beta_1$	Tb-160 (Dg-K $\alpha_2$ :45.2)	-----
	*46.6 Sm-K $\beta_2$	Tb-160 (Dy-K $\alpha_1$ :46.0)	-----
	*48.7 Gd-K $\beta_1$	-----	-----
	*49.9 Gd-K $\beta_2$	Yb-169 (Tm-K $\alpha_2$ :49.8+ + Tm-K $\alpha_1$ :50.7)	-----
	<u>121.8</u>	-----	<u>Ba-131(123.7)+Eu-154(123.1)</u>
Eu-154(16.0 a)	<u>244.7</u>	-----	Ba-131(239.6+246.8+249.4)
	329.0	-----	-----
	344.3	-----	Hf-181(345.9)+Pa-233(340.5)
	123.1	Ba-131(123.7)	Eu-152(121.8)
Eu-155(1.811 a)	*40.9	Ce-141 (Pr-K $\beta_1$ :40.7)	-----
Tb-160(72.1 d)	*105.3	-----	-----
	*45.2 Dy - K $\alpha_2$	Eu-152 (Sm-K $\beta_1$ :45.4)	-----

TABALA 3-16 (cont.)

Radionucleido	Energia (KeV)	Interferencias Detector LEPS	Interferencias adicionales Detector convencional
Tb-160 (72.1 d)	*46.0 Dy-K $\alpha_1$	Eu-152 (Sm-K $\beta_2$ :46.6)	-----
	* <u>86.8</u>	Pa-233 (86.6)	-----
	*93.9	Yb-169 (96.6) + +Pa-233 (U-K $\alpha_2$ :94.7)	-----
	197.0	Yb-169 (197.8)	Fe-59 (192.5)
	215.6	Ba-131 (216.0)	-----
	<u>298.5</u>	Pa-233 (300.1)	-----
Yb-169 (31.8 d)	* (498+50.7) Tm-K $\alpha$	Eu-152 (Gd-K $\beta_2$ :49.9)	-----
	*57.5 Tm-K $\beta_1$	Hf-181 (Ta-K $\alpha$ :57.5) + +Ta-182 (W-K $\alpha_2$ :58.0)	-----
	*63.5	Hf-173 (Lu-K $\beta_2$ :63.0) + +Lu-177 (Hf-K $\beta_1$ :63.2)	-----
	*93.6	Tb-160 (93.9) + +Pa-233 (U-K $\alpha_2$ :94.7)	-----
	110.0	Pa-233 (U-K $\beta_3$ :110.4) + +U-K $\beta_1$ :111.3)	Pa-233 (U-K $\beta_2$ :114.5) + +Ta-182 (113.7 +116.4) + +Lu-177 (113.0) +Hf-175 (113.8)

TABLA 3-16 (cont.)

Radionucleido	Energia (KeV)	Interferencias Detector LEPS	Interferencias adicionales Detector convencional
Yb-169 (31.8)	*177.0 197.8	----- Tb-160(197.0)+ +Ta-182(198.3)	----- Fe-59(192.5)
Lu-177 (6.74 d)	*(54,6+55.8)Hf-K $\alpha$ *63.2 Hf-K $\beta_1$ 113.0 *208.3	Hf-177 (Lu-K $\alpha_1$ :54.7) Yb-169 (63.5)+ +Hf-175 (Lu-K $\beta_2$ :63.0) Pa-233 (U-K $\beta_2$ :114.5) Au-199 (208.2)	----- ----- Pa-233 (U-K $\beta_3$ :110.4 + +U-K $\beta_1$ :111.3)+Yb-169(110.0) -----
Hf-175 (70 d)	*54.7 Lu-K $\alpha_1$ *61.3 Lu-K $\beta_1$ *63.0 Lu-K $\beta_2$ 113.8 *229.5	Lu-177 (Hf-K $\alpha_2$ :54.6+ +Hf-K $\alpha_1$ :55.8) ----- Yb-169 (63.5)+ +Lu-177 (Hf-K $\beta_1$ :63.2) Lu-177 (113.0)+ +Ta-182 (113.7)+ +Pa-233 (U-K $\beta_2$ :114.5) Ta-182 (229.3)	----- ----- ----- Yb-169 (110.0)+ +Pa-233 (U-K $\beta_3$ :110.4 + +U-K $\beta_1$ :111.3)+Ta-182(116.4) -----

TABLA 3-16(cont.)

Radionucleido	Energia (KeV)	Interferencias Detector LEPS	Interferencias adicionales Detector convencional
Hf-181 (42.5 d)	*56.3 Ta-K $\alpha_2$	-----	-----
	*57.5 Ta-K $\alpha_1$	Ta-182 (W-K $\alpha_2$ :58.0) + +Yb-169 (Tm-K $\beta_1$ :57.5)	
	*65.2 Ta-K $\beta_1$	Ta-182 (65.7)	-----
	*67.0 Ta-K $\beta_2$	Ta-182 (67.7)	-----
	<u>133.0</u>	Bo-131 (133.5)	-----
	<u>136.2</u>	-----	-----
	<u>136.9</u>	-----	-----
Ta-182 (115.0 d)	345.9	-----	Eu-152 (344.3)
	*58.0 W-K $\alpha_2$	Hf-181 (Ta-K $\alpha_1$ :57.5) + +Yb-169 (Tm-K $\beta_1$ :57.5)	-----
	*59.3 W-K $\alpha_1$	Yb-169 (Tm-K $\beta_2$ :59.1)	-----
	*65.7	Hf-181 (Ta-K $\beta_1$ :65.2)	-----
	*67.7	Hf-181 (Ta-K $\beta_2$ :67.0)	-----
	*69.1 W-K $\beta_2$	Au-199 (Hg-K $\alpha_2$ :68.9)	-----
	<u>100.1</u>	<u>Pa-233 (U-K<math>\alpha_1</math>:98.4)</u>	Pa-233 (U-K $\alpha_2$ :94.7)

TABLA 3-16 (cont.)

Radionucleido	Energia (KeV)	Interferencias Detector LEPS	Interferencias adicionales Detector convencional
Ta-182(115.0 d)	113.7	Hf-175(113.8) +	Yb-169(110.0) +
		+Lu-177(113.0) +	+Pa-233(U-K $\beta_3$ :110.4 +
		+Pa-233(U-K $\beta_2$ :114.5)	+U-K $\beta_1$ :111.3)
	116.4	-----	-----
	<u>152.4</u>	-----	Au-199(158.4)+Sc-47(159.4)
	198.3	Yb-169(197.8) + +Tb-160(197.0)	Fe-59(192.5)
Au-199(3.15 d)	<u>*222.1</u>	-----	-----
	*229.3	Hf-175(229.5)	-----
	*264.1	-----	-----
	*68.9 Kg-K $\alpha_2$	Ta-182(W-K $\beta_2$ :69.1)	-----
Pa-233(27.4 d)	158.4	-----	Ta-182(152.4)+Sc-47(159.4)
	*208.2	Lu-177(208.3)	-----
	*13.4 U-L <sub>III</sub> $\alpha_2$	-----	-----
	*17.4 U-L <sub>I</sub> $\beta_3$	-----	-----
	*20.5 U-LI $\gamma_2$	-----	-----

TABLA 3-16 (cont.)

Radionucleido	Energía (KeV)	Interferencias Detector LEPS	Interferencias adicionales Detector convencional
Pa-233 (27.4 d)	*75.3	-----	-----
	*86.6	Tb-160 (86.8)	-----
	94.7 U-K $\alpha_2$	Yb-169 (93.6)+Tb-160 (93.9)	-----
	98.4 U-K $\alpha_1$	Ta-182 (100.1)	-----
	103.9	-----	-----
	(110.4+111.3) U-K $\beta_3$ +U-K $\beta_1$	Yb-169 (110.0)	Lu-177 (113.0)
	114.5 U-K $\beta_2$	Lu-177 (113.0)	-----
	145.4	Ce-141 (145.4)	Fe-59 (142.5)
	271.5	Eu-152 (271.0)	-----
	<u>300.1</u>	<u>Tb-160 (298.5)</u>	-----
	311.9	-----	-----
	340.5	-----	Hf-181 (345.9)+Eu-152 (344
	375.4	-----	Ba-131 (373.1)
	398.5	-----	-----

\* Rayos X y gamma cuya identificación no ha sido posible mediante el detector convencional.

A la vista del estudio realizado se puede concluir que la aplicación conjunta de dos detectores de Ge(Li), un detector tipo coaxial de  $30 \text{ cm}^3$  y un detector tipo plano (LEPS) de  $3 \text{ cm}^3$ , en la determinación de los elementos constituyentes de rocas y minerales por análisis por activación con neutrones térmicos no destructivo aumenta el número de elementos determinables así como la sensibilidad analítica. Un detector pequeño con excelente resolución como el LEPS, puede incrementar considerablemente la precisión en la determinación de nucleidos cuyas transiciones más fuertes correspondan a energías por debajo de 200 KeV.

Para la determinación de radionucleidos la vida - larga tales como: Sc-47 (3.40d), Cr-51(27.8d), Fe-59(44.6d), Ba-131(11.5d), Hf-181(42.5d) y Pa-233(27.4d), se pueden utilizar ambos detectores sin apreciar ninguna ventaja - especial de uno sobre otro.

Es en la determinación de los elementos del grupo de las tierras raras donde se aprecian claramente las ventajas del detector LEPS, ya que las transiciones más intensas de los nucleidos correspondientes al grupo de los lantánidos se presentan en energías inferiores a 200 KeV.

En el caso del cerio, se observa que para obtener valores precisos mediante el detector convencional, se debe



eliminar la contribución del Fe-59 (142.5 KeV) en el pico de 145.4 KeV del Ce-141, aunque esta contribución del Fe-59 al pico multiple sea solo de un 3% en el caso de las rocas silíceas como la G-2. Sin embargo con el detector LEPS el pico de 145.4 KeV del Ce-141 está perfectamente separado del pico de 142.5 KeV del Fe-59.

En el neodimio, el pico de 91.1 KeV del Nd-147 aparece completamente resuelto en el espectro tomado con el detector LEPS y libre de cualquier tipo de interferencia.

En el caso del europio se suele seleccionar el pico de 121.8 KeV del Eu-152 (12.7 a) para el cálculo de la concentración correspondiente de europio en la muestra. En el espectro tomado con el detector convencional esta línea presenta una interferencia bastante importante del pico de 123.7 KeV del Ba-131 (11.5 d) durante las primeras semanas después del final de la irradiación. Estos dos picos están perfectamente resueltos y separados en el espectro tomado con el detector LEPS aunque el contenido de bario en la roca G-2 es bastante alto.

En el terbio, el problema que se plantea, en el espectro tomado con el detector convencional, es que aunque los picos de Tb-160 correspondientes a energías superiores a 400 KeV son bastante intensos sin embargo la

mayoría de sus picos contienen una o más interferencias de otras especies. Se puede seleccionar el pico de 298.5 KeV después de eliminar la contribución del pico de Pa-233 de 300.1 KeV. El detector LEPS puede resolver la línea de 86.8 KeV del Tb-160 pero en este caso hay que sustraer una pequeña actividad de la línea de 86.6 KeV del Pa-233 bastante débil. Es importante determinar la cantidad de Tb-160 con buena precisión para eliminar su contribución en los picos próximos de otros radionucleidos, como el pico de 197.8 KeV del Yb-169 y al pico de 216.0 KeV del Ba-131 antes de determinar las actividades correspondientes a estos dos nucleidos.

En el caso del yterbio, que entra dentro del grupo de las tierras raras pesadas, a pesar de su intensidad, el pico de 110.0 KeV del Yb-169 no se puede seleccionar para su determinación cuantitativa, porque presenta serias interferencias de los rayos  $\alpha$ -K $\beta$  del Pa-233. Existen otros picos de energías superiores del Yb-169 como es el de 197.8 KeV pero se deben eliminar previamente las contribuciones del Fe-59 (192.5 KeV) y del Tb-160 (197.0 KeV). Por lo tanto existen un gran número de dificultades para una evaluación precisa de yterbio con el detector de Ge(Li) convencional. Con el detector LEPS si se selecciona la línea de 63.5 KeV, esta es dependiente de la proporción de hafnio y lutecio existente en la

muestra, ya que con este pico del Yb-169, interfieren los rayos X del Hf-175 ( $\text{Lu-K}\beta_2$ : 63.0 KeV) y del Lu-177 ( $\text{Hf-K}\beta_1$ : 63.2 KeV). La mejor solución es elegir el rayo gamma de 177.0 KeV donde no es necesario eliminar ninguna actividad interferente.

Por último señalaremos las ventajas del detector LEPS en el caso del tántalo. En el espectro del Ta-182 tomado con el detector LEPS se puede seleccionar la línea de 67.7 KeV libre de interferencias, salvo una pequeña contribución del rayo Ta- $\text{K}\beta_2$  (Hf-181) de 67.0 KeV ó el pico de 100.1 KeV, eliminando la interferencia del Pa-233 ( $\text{U-K}\alpha_1$ : 98.4 KeV). Para el detector convencional no es accesible el pico de 67.7 KeV y el pico de 100.1 KeV aparece muy distorsionado.

#### 4.- RESUMEN Y CONCLUSIONES

Se ha realizado un estudio sistemático de la aplicación de la espectrometría gamma de alta resolución de la zona de bajas energías del espectro, al análisis por activación neutrónica.

Este estudio se ha podido efectuar gracias a la disponibilidad de un detector de Ge(Li), LEPS, tipo plano, de pequeño volumen, cuyas especiales características de resolución y eficiencia le hacen especialmente apropiado para el estudio de esta región de energías del espectro gamma, pudiendo poner de manifiesto aspectos del mismo que no habian podido ser revelados con anterioridad.

Asimismo, la obtención y tratamiento de datos de numerosos espectros gamma se ha llevado a cabo por calculo electrónico, aprovechando los medios existentes en el Laboratorio de Técnicas Analíticas Nucleares, no solo de computador, sino especialmente de programación para el calculo de espectros, tales como los programas GAMMAS y similares sin los cuales no hubiera sido posible la realización de este trabajo.

Previamente a la labor experimental, se realizaron las determinaciones del poder de resolución del detector LEPS y del sistema electrónico, así como la de la eficiencia

cia absoluta del detector mediante la utilización de una solución patrón de selenio-75 en las condiciones geométricas normalizadas utilizadas en todas las medidas. La importancia de esta calibración en eficiencias del detector es fundamental, ya que de esta forma los resultados de las medidas se pueden expresar de forma absoluta, por lo que los resultados obtenidos en esta investigación son perfectamente comparables con los obtenibles en otros laboratorios, con cualquier otro tipo de detector, con geometrias diferentes, con otro reactor nuclear distinto como fuente de irradiación etc.

El estudio bibliográfico realizado, sobre la aplicación de la zona de bajas energías del espectro gamma en análisis por activación neutrónica, indica que los primeros ensayos de este tipo se realizaron en 1967 - utilizándose contadores proporcionales y detectores de NaI(Tl) de muy poco espesor. Aunque el desarrollo de los detectores de semiconductores impulsó las aplicaciones de la espectrometría gamma no destructiva al análisis por activación, casi todas las aplicaciones se han realizado en el campo de las zonas de energías superiores a 200 KeV, existiendo solo algunos casos aislados, en los que se han estudiado la medida de fotones de baja energía y los rayos X para su aplicación al análisis -

por comparación, faltando un estudio sistemático y - exhaustivo de los mismos ya que el mas completo realizado por Meinke en 1973 comprende unicamente cuatro - elementos (bromo, cobre, plata y cobalto), aplicado a la determinación de estos elementos en cabellos humanos (19).

Además se ha realizado un estudio teórico sobre los mecanismos de producción de los rayos X de los productos radiactivos originados en las reacciones nucleares tipo  $(n,\gamma)$  que tienen lugar durante la irradiación de las muestras en un reactor nuclear, presentándose - un resumen de los mismos en el apartado 2.3.

La clasificación del mecanismo de producción de los rayos X es de vital importancia para la asignación correcta de los mismos al elemento que se desea determinar, ya que los rayos X producidos no siempre corresponden a dicho elemento sino que pueden ser los característicos del elemento que le precede o sigue en el - sistema periódico, dependiendo del tipo de desintegración radiactiva que sufre el nucleido que se desintegra. Estos tres casos son los siguientes:

- a) Los radionucleidos que sufren desintegración beta - seguida por conversión interna emiten los rayos X

características del elemento que la sigue en el sistema periódico.

- b) Los radionucleidos que se desintegran mediante el proceso de captura electrónica orbital emiten los rayos X característicos del elemento que le precede en el sistema periódico.
- c) Los radionucleidos que sufren un proceso de transición isomérica seguido de conversión interna - emiten los rayos X característicos del elemento - que se desintegra.



De las investigaciones realizadas en la presente tesis se pueden obtener las siguientes conclusiones:

- 1) Teóricamente la espectrometría gamma de alta resolución de la zona de bajas energías del espectro, presenta características adecuadas para su empleo en análisis por activación no destructivo, ya que todos los radionucleidos productos de activación (n, $\gamma$ ) emiten rayos X y muchos de ellos fotones de baja energía.
- 2) Los detectores de semiconductores de Ge(Li) de tipo plano reúnen propiedades idóneas para realizar la espectrometría gamma de esta región del espectro, por las siguientes razones:
  - Poseen una excelente resolución del orden de los eV.
  - Tienen eficiencias relativamente altas para la región de energías entre 100-200 KeV.
  - Su eficiencia para altas energías es muy baja por lo que el fondo debido al efecto Compton en la región de bajas energías es muy pequeño.

Todas estas características hace que este tipo de detector sea muy adecuado y de gran sensibilidad, para las medidas no destructivas de mezclas complejas de radionucleidos emisores de rayos X y fotones de baja energía, resolviendo espectros cuya resolución es imposible con otro tipo de detectores.

- 3) El estudio de las características nucleares de los radionucleidos productos de activación ( $n, \gamma$ ) ha permitido realizar una selección de 35 elementos del sistema periódico, desde el selenio ( $Z=34$ ) hasta el thorio ( $Z=90$ ) cuyos productos de activación presentan características nucleares adecuadas para poder utilizar la región de bajas energías del espectro. Esta selección se ha realizado a base de los siguientes criterios:

- Abundancia isotópica y sección eficaz de activación del isótopo estable adecuadas.
- Periodo de semidesintegración del producto suficientemente largo.
- Productos de activación emisores de rayos X o fotones gamma de energía inferior a 400 KeV.

- 4) Se ha conseguido una colección de los espectros de rayos X y fotones gamma de baja energía, comprendidos en el margen de 10 a 400 KeV, emitidos por los productos de activación neutrónica de los 35 elementos seleccionados. Algunos de ellos se han obtenido por primera vez pues no existen antecedentes bibliográficos de los mismos. En dichos espectros se han identificado y asignado los rayos X y fotones de baja energía correspondientes, de acuerdo con los datos teóricos de los que se dispone en la literatura.

Mediante el detector de semiconductores de Ge(Li), LEPS, de tipo plano con un volumen activo de  $3 \text{ cm}^3$ , se tomaron los espectros de los productos de la activación de soluciones patrón de concentraciones conocidas de los elementos seleccionados, irradiadas durante 10 horas en el tubo vertical del reactor JEN-1 y dejadas enfriar durante 15 horas. Asimismo se obtuvieron los espectros de las mismas muestras con un detector de Ge(Li), de tipo coaxial con un volumen activo de  $40 \text{ cm}^3$ , a efectos comparativos.

- 5) El tratamiento de los datos de los espectros obtenidos con los dos detectores se ha realizado mediante una calculadora electrónica con el programa GAMMAS que localiza la posición de los picos y determina sus ener-

gias. Además, calcula las áreas de los picos, el error estadístico, así como el límite de detección cualitativa de los mismos. A partir de las áreas de los picos obtenidos por el programa se han calculado las sensibilidades analíticas para cada elemento, expresadas como la cantidad mínima de elemento detectable por medida del pico de mayor área, en las condiciones normalizadas de irradiación y medida de la actividad empleadas durante todo este trabajo.

Dada la diferente problemática que presenta el empleo de rayos X y fotones gamma de baja energía, en el análisis por activación, no tanto en cuanto a las diferencias en energías de ambos tipos de radiaciones, que incluso pueden superponerse en algunos casos, sino principalmente por mecanismo de origen de las mismas y las posibilidades experimentales de detección de que disponemos en nuestros laboratorios, el tratamiento desarrollado para ambos tipos de radiación sigue dos caminos distintos.

- 6) En el caso de los fotones gamma de baja energía, cuya medida en el margen de energías de 90 a 400 KeV ha sido posible realizarla en ambos detectores se ha efectuado una comparación directa de las sensibilidades, para un mismo fotopico, en ambos detecto -

res, con el resultado de que 18 elementos presentan mejor sensibilidad con el detector LEPS que con el Ge(Li) convencional, oscilando los factores de mejora entre 3600% y 20%. El resto de los elementos no presenta mejoras apreciables en el aspecto sensibilidad. Es claro que estas cifras relativas variarán con la eficiencia de los detectores, pero las cifras obtenidas en este trabajo pueden considerarse cifras promedio al ser los detectores empleados de tamaño medio y por consiguiente con una eficiencia representativa del promedio.

También hay que tener en cuenta, que los datos de sensibilidades obtenidos se refieren a elementos puros, y por lo tanto son cifras desfavorables para el detector LEPS, ya que en la practica real, al existir otras actividades, aumenta el fondo debido a los efectos Compton de otras energias con el detector convencional mucho más rápidamente a como lo hace en el detector LEPS, por lo que las sensibilidades reales, en el caso de muestras complejas, favorecen al detector LEPS por un factor proporcional a la radiactividad total de la muestra y tanto mayor cuanto más energéticas sean las radiaciones emitidas

- 7) La utilización del detector LEPS para fotones gamma de bajas energias, si resulta ventajosa, en el aspecto

to de separación de los picos y disminución de las -  
interferencias, debido a su elevado poder de resolu-  
ción. Esta ventaja es tanto más notable al aumentar  
la complejidad de la muestra, por lo que no es posi-  
ble dar datos cuantitativos de su magnitud, ya que  
depende de la zona de energías y del número de picos  
que aparecen en el espectro de esa zona, lo cual es  
función de la complejidad de la muestra y del tipo -  
de radionucleidos presentes en la misma. Unicamente,  
a titulo ilustrativo podemos decir que en el margen  
de energías de 90 a 150 KeV, se pueden solapar 3 o 4  
picos completamente en el detector convencional, -  
mientras que con el detector LEPS pueden detectarse  
sin interferencias una cifra cinco o seis veces supe-  
rior. Un ejemplo de esta posibilidad se presenta más  
adelante con el análisis de rocas patrón del U.S. -  
Geological Survey empleando ambos tipos de detectores.

- 8) Las sensibilidades analíticas obtenibles experimental  
mente mediante la medida de los rayos X con el detec-  
tor de semiconductores LEPS, son en general más bajas  
o del mismo orden de magnitud que las obtenibles para  
los mismos elementos, utilizando un detector de Ge(Li)  
convencional para la medida de fotones gamma de --  
otras energías, dado que no es posible efectuar, com-  
paraciones directas sobre un mismo rayo X ya que este

no es detectable por los detectores convencionales.

Sin embargo el empleo de la espectrometría de rayos X para el análisis por activación no destructivo, presenta algunos inconvenientes, tales como posibles interferencias en la producción de rayos X que conduciría a un error por exceso, - así como atenuaciones y absorción de los rayos X por la propia muestra cuando esta sea muy densa lo que conduciría a un error por defecto. Para - evaluar la magnitud de estas interferencias se - ha estudiado experimentalmente su variación en - función de los parametros que les afectan, obteniéndose las siguientes conclusiones:

- 9) La existencia de radionucleidos emisores de fotones gamma y de rayos X en la muestra medida, no ejerce influencia apreciable estadísticamente en la producción de un rayo X de otro radionucleido presente en la muestra hasta un margen de actividades del orden de 20 veces superior al del radionucleido productor del rayo X. Los experimentos se han realizado indistintamente con emisores de rayos X y fotones gamma como asimismo con emisores de fotones gamma puros y en todos los casos han resultado negativos.

10) Los experimentos realizados para determinar si la presencia de emisores radiactivos en la muestra, tiene influencia, en la producción de rayos X de otros nucleidos estables presentes en cantidades apreciables en las muestras han resultado negativos. Estas interferencias pueden tener importan-  
cia en dos casos:

- Cuando el elemento estable interferente tiene poca sensibilidad analítica y por tanto tiene que estar presente en cantidades abundantes por lo que puede originar rayos X factibles de poder medirse.
- Cuando el rayo X producido por el elemento estable es el mismo que el correspondiente al elemento analizado por ser ambos vecinos en el sistema periódico.

Determinaciones experimentales en ambos casos, - con la máxima cantidad de emisor gamma que puede - soportar el detector sin distorsionar el espectro (tiempo muerto del analizador del 35%.) y concen - traciones crecientes de hasta 20 mg/ml del elemen - to estable han probado que la interferencia en los casos mas desfavorables es inferior al 0.02%.



11) La autoabsorción de los rayos X por la muestra depende de la composición de la misma y de la energía de la radiación y puede llegar a ser significativa para los rayos X de baja energía. Ello no crearía problema en el caso del análisis por activación si muestras y comparadores tuvieran la misma composición pero al no ocurrir así en la práctica, estas diferencias pueden originar errores importantes. Los experimentos han demostrado que las diferencias de intensidad de los rayos X entre una muestra líquida y un mineral con el 20% de hierro pueden llegar a ser del 50%. Para energías inferiores a 50 KeV y de un 10% para rayos X de energías del orden de los 100 KeV. Por tanto en el empleo de los rayos X en análisis por activación es preferible en lugar de utilizar el método del comparador recurrir al método del patrón interno.

Para comprobar en la práctica las ventajas de la espectrometría gamma de la zona de bajas energías del espectro empleando detectores de semiconductores de Ge(Li) de alta resolución, se ha realizado el análisis completo de una roca patrón, el granito G-2 del U.S. Geological Survey comparando los resultados obtenidos realizando la espectrometría gamma con un detector de Ge(Li) convencional y un detector de Ge(Li) tipo plano, en el intervalo de

10 a 400 KeV.

Para ello las muestras y comparadores fueron irradiados de la forma habitual en el tubo vertical del reactor JEN-1 durante una semana. Al cabo de 10 días de enfriamiento se tomaron los espectros gamma de las muestras con ambos tipos de detectores a efectos comparativos. El estudio e interpretación de los espectros ha permitido obtener las siguientes conclusiones:

- 12) En el espectro tomado con el detector LEPS se han identificado un total de 63 picos en la región de energías entre 10 y 400 KeV de los que la mitad (32 picos) están por debajo de los 100 KeV, límite práctico del detector convencional. En el intervalo de energías entre 100 y 200 KeV se pueden identificar 17 picos en el detector LEPS y solo 7 en el convencional. Ello permite aumentar tanto el número de elementos determinados como la sensibilidad analítica, así como la precisión en la determinación de nucleidos cuyas transiciones más intensas corresponden a la región de energías entre 100 y 200 KeV.
- 13) Debido al elevado poder de resolución del detector LEPS, la gran ventaja de dicho detector consiste en la anulación de múltiples interferencias que por superpo-

10 a 400 KeV.

Para ello las muestras y comparadores fueron - irradiados de la forma habitual en el tubo verti cal del reactor JEN-1 durante una semana. Al ca- bo de 10 días de enfriamiento se tomaron los es- pectros gamma de las muestras con ambos tipos de detectores a efectos comparativos. El estudio e interpretación de los espectros ha permitido obtener las siguientes conclusiones:

- 12) En el espectro tomado con el detector LEPS se han - identificado un total de 63 picos en la región de - energías entre 10 y 400 KeV de los que la mitad (32 - picos) están por debajo de 120 KeV, limite prácti co del detector convencional. En el intervalo de energías entre 100 y 200 KeV se pueden identificar 17 pi- cos en el detector LEPS y solo 7 en el convencional. Ello permite aumentar tanto el número de elementos de terminados como la sensibilidad analítica, así como - la precisión en la determinación de nucleidos cuyas - transiciones más intensas corresponden a la región de energías entre 100 y 200 KeV.
- 13) Debido al elevado poder de resolución del detector - LEPS, la gran ventaja de dicho detector consiste en la anulación de multiples interferencias que por superpo-

sición de picos se presentan en el detector convencional. Esta condición, que simplifica mucho los calculos y aumenta la precisión de la medida. es especialmente cierta para el caso de la determinación de los elementos de las tierras raras, cuyas transiciones más intensas se presentan en energías inferiores a 200 KeV. En el texto se aclaran una por una las ventajas de emplear el detector LEPS en el análisis de una mezcla de tierras raras, caso muy frecuente en la determinación de minerales y rocas y que se ha demostrado que es de importancia vital en geoquímica y cosmoquímica.

- 14) Como conclusión final podemos establecer la siguiente: La espectrometría gamma de alta resolución de la región de bajas energías del espectro con detectores de Ge(Li) de tipo plano, presenta grandes ventajas sobre el empleo de detectores convencionales en el análisis por activación neutrónica no destructivo de materiales muy complejos.

Estas ventajas están basadas en el mayor poder de resolución y menor fondo de esta región del espectro debido al efecto Compton de este tipo de detectores, que incrementan el número de elementos determinables, su sensibilidad y disminuyen las interferencias. lo

que se pone especialmente de manifiesto cuando se obtiene el espectro de la radiación gamma de energía inferior a 250-300 KeV.

Mientras que el empleo de fotones de baja energía en análisis por activación no presenta dificultades técnicas especiales, el empleo de los rayos X emitidos por los productos de activación de los nucleidos estables, que presenta unas sensibilidades comparables con los fotones gamma y en muchas casos mejores, tiene tales dificultades debidas a la autoabsorción de los rayos X por la muestra que no es posible emplear el metodo del comparador - siendo necesario recurrir al metodo del patrón interno, mucho más complicado técnicamente.

El empleo con detectores apropiados de la zona del espectro entre 100 y 250 KeV se recomienda - fuertemente para el análisis no destructivo de los elementos de las tierras raras en materiales complejos como suelos, rocas y minerales que no es posible realizar de otro forma, sino recurriendo a - complicadas y tediosas separaciones radioquímicas.

## 5 - BIBLIOGRAFIA

1. Shemberg y col.; Anal. Chem, 39, 780 (1967).
2. Pillay K.K.S y Miller, W.W.; J. Radioanal. Chem, 2, 97 (1969).
3. Peisach, M.; Radiochem. Radioanal. Letters, 8, 267 (1971).
4. Gattet, J. y Albert, Ph.; Compt. Rend., 247, 1861 (1958).
5. Ewan, G.T. y Tavendale, A.J.; Can. J. Phys., 42, 2286 (1964).
6. Goulding, F.S.; Lawrence Radiation Lab., Rept. UCRL-11302 (1964).
7. Goulding, F.S. v Hansen, W.L.; Lawrence Radiation Lab.; Rept. UCRL - 11261 (1964).
8. Hansen, W. L. y Jarret, B.V.; Lawrence Radiation Lab., Rept. UCRL - 11123, (1964).
9. Miner, C.E.; Lawrence Radiation Lab., Rept. UCRL - 11946 (1965).
10. Mann, H.M. y Col.; Proc. third annual Nucl. Eng. education conference, Argonne National Laboratory (1962).
11. Elad, E., Nucl. Instr. and Meth., 37, 327 (1965).
12. Bowman, H.R., Hyde, E. K., Thompson, J.E. y Jarad, R. D.; Science 151, 52 (1966).
13. Goulding, S. y Stone, Y.; University of California Research Lab., Rept. UCRL - 19860 (1966).
14. Mantel, M. y Amiel, S.; Anal. Chem, 45, 548 (1972).
15. Mantel, M. y Amiel, S.; Anal. Chem, 45, 2393 (1973).

16. Mantel, M. y Amiel, S.; J. Radioanal. Chem, 16, 127 (1973).
17. Lavi, N.; Radiochem. Radioanal. Letters, 17, 177 (1974).
18. Allen, R.O.; Anal. Chem, 46 , 1297 (1974)
19. Meinke. H. y col.; Radiochem. Radioanal. Letters., 14, 217 (1973).
20. Friedman, M.H. y col.; Anal. Chem, 46, 236 (1974).
21. Janssens, M.; J. Radioanal. Chem, 26, 305 (1975).
22. Zoller, W. H., y Gordon, G.E.; Anal. Chem., 42, 257 (1970).
23. Travesi, A.; Análisis por Activación Neutrónica, 1<sup>a</sup> ed. Publicaciones Científicas de la J.E.N, Madrid, 1975.
24. De Soete, D., Gijbels, R., Hoebbe, J.; Interscience, Londres, 1975.
25. Boyd, G.E.; Anal. Chem., 21, 335 (1949).
26. Muggleton, A. H.F.; Nucl. Instr. and Meth., 101, 113 (1972).
27. Dearnaley, G. y Northrop, D.C.; Semiconductor Counters for Nuclear Radiations, E. and F.N. Spon Limited, Londres, 1963.
28. Tavendale, A. J.; Semiconductor Nuclear Radiation Detector, Annual Review of Nuclear Science, 1967.
29. Proceedings of the Lithium - Drifted Germanium Detectors Symposium, Agencia Internacional de Energia Atómica, Viena, 1966.



30. Hollander, J.M.; Nucl. Instr. and Meth., 43, 65 (1966).
31. Tanarro, A.; Instrumentación Nuclear, 1<sup>a</sup> ed. Publicaciones Cientificas de la J.E.N, Madrid, 1970.
32. Pérez Modrego, S. y Plata Bedmar, A.; Radiaciones ionizantes, 1<sup>a</sup> ed. Madrid, 1965, pag. 60.
33. Kaplan, I.; Fisica Nuclear, 1<sup>a</sup> ed. Aguilar S.A, Madrid, 1962, pag. 393.
34. Latyshev, G.D.; Revs. Modern Phys., 19, 32 (1947).
35. Goulding, F.S; Lawrence Radiation Lab., Rept. UCRL-16321. (1965).
36. Yamazaki, T. y Hollander, J.M., Lawrence Radiation Lab., Rept. UCRL - 16064 (1965).
37. Gurfinkel, J. y Notea, A.; Nucl. Instr. and Meth., 57, 173 (1967).
38. De Cröes, M. y Bäckström; G., Arkiv. Fysik 16, 560 (1967).
39. Cook, C.S.; Nucl. Inst. and Meth; 4 103 (1952).
40. Nagpal, T.S. y Ganther R.E.; Nucl. Instr. and. Meth. 89, 311 (1970).
41. Day, P.P.; Phys. Rev., 97, 689 (1955)
42. Graham. R.L. y col.; Nucl. Instr. and Meth., 9 , 245 (1960).
43. Edwards, W.F. y Gallagher, C.J.; Nucl. Phys, 26, 649 (1961).
44. Dominguez, G. y Travesi, A.; Energia Nuclear, 7, 28 (1963).

45. Travesi, A., Adrada, J y Palomares, J.; Nuclear Activation Techniques in the Life Sciences, 89 (1972).
46. Currie, L.A.; Anal. Chem., 40 , 586 (1968).
47. Lederer, C.M., Hollander, M. Y. y Perlman, I.; Table of Radioisotopes, 6<sup>a</sup> ed. John Willey and Sons, New York, 1967.
48. Mc Cutchen, R.L.; Statistical Treatment of Data, Master Analytical Manual TID-7015 (Sect 1) Method 10060.
49. Bermudez Polonio, J.; Teoria y practica de la espectroscopia de los rayos X, 1<sup>a</sup> ed. Alhambra. S.A, Madrid, 1967.
50. Compton, A.H. y Allison, S.K.; X Rays in theory and experiments, 1<sup>a</sup> ed. Van Nostrand Company, Inc, New York, 1935, pag 792.
51. Bhatti, M.K. y Townsed, A.; Anal. Chem. Asia., 56, 55 (1965).
52. Stakheev, Yu. I. y Kuznetsov, Vn N.; Zavodsk. Lab. 36, 1 (1970).
53. Crouthamel, C.E.; Applied gamma ray spectrometry. Pergamon Press, New York, 1<sup>a</sup> ed. (1960), 2<sup>a</sup> ed. (1971).
54. Dams. R. y Adams. F.; J. Radioanal. Chem., 7, 127 (1971).
55. Erdtmann, G. y Soyka, W.; J Radioanal. Chem., 26, 375 (1975).
56. Erdtmann, G. y Soyka, W.; J. Radioanal, Chem, 27, 137 (1975).

57. Bearden, J.A.; Rev. Mod. Phys., 39, 78 (1967).

## APENDICE

A

Programa para el calculo de la eficiencia del detector de Ge(Li).

B

Colección de espectros gamma de los productos de -  
activación neutrónica de los elementos seleccionados  
del S.P. desde  $Z=34$  hasta  $Z=90$  obtenidos mediante el  
detector LEPS

A

PROGRAMA PARA EL CALCULO DE LA EFICIENCIA DEL  
DETECTOR DE GE LI

```

PLIST
1  REM PROGRAMA PARA EL CALCULO DE LA EFICIENCIA DEL DETECTOR DE GELI
2  REM PARA DIVERSOS PICOS
3  REM PROGRAMA PARA CINCO MUESTRAS Y CINCO MEDIDAS DE CADA MUESTRA
10  PRINT TAB(30)"ENTRADA DE DATOS"
20  PRINT "ENERGIA DEL PICO EN KEV";
25  INPUT P1
30  PRINT "PERIODO DEL RADIONUCLIDO";
40  INPUT T1
50  PRINT "DOSIS TOTAL (MMCI)";
60  INPUT D1
70  PRINT "PESO TOTAL (MG)";
80  INPUT G1
90  PRINT "PESO MUESTRAS (MG)";
100  INPUT M[1],M[2],M[3],M[4],M[5]
110  PRINT
120  PRINT TAB(20)"ACTIVIDADES CORREGIDAS (DPM)"
130  LET S1=0
140  FOR I=1 TO 5
150  PRINT TAB(5)"MUESTRA";I;
160  INPUT A[I],B[I],C[I],D[I],E[I]
170  LET E9=2.22000E+06*M[I]*D1/G1
180  LET A[I]=A[I]*100/E9
190  LET B[I]=B[I]*100/E9
200  LET C[I]=C[I]*100/E9
210  LET D[I]=D[I]*100/E9
215  LET E[I]=E[I]*100/E9
215  LET S1=S1+A[I]+B[I]+C[I]+D[I]+E[I]
220  NEXT I
230  LET E1=S1/25
240  LET S2=0
250  FOR I=1 TO 5
260  LET S2=S2+(A[I]-E1)^2
270  LET S2=S2+(B[I]-E1)^2
280  LET S2=S2+(C[I]-E1)^2
281  LET S2=S2+(D[I]-E1)^2
282  LET S2=S2+(E[I]-E1)^2
290  NEXT I
300  LET S3=SQR(S2/24)
310  LET S4=S3*100/E1
320  PRINT
330  PRINT TAB(20)"CALCULOS EFICIENCIA PICO";P1;"KEV"
340  PRINT
350  PRINT "1","2","3","4","5"
355  FOR I=1 TO 5
360  PRINT A[I],B[I],C[I],D[I],E[I]
370  NEXT I
75  PRINT
80  PRINT "EFICIENCIA MEDIA =";E1
90  PRINT "DESV. TIP. =";S3,"DESV. TIP. % =";S4
90  PRINT
10  PRINT
20  GOTO 10
30  END

```

B

COLECCION DE ESPECTROS GAMMA DE LOS PRODUCTOS DE ACTI  
VACION NEUTRONICA DE LOS ELEMENTOS SELECCIONADOS DEL -  
S.P. DESDE  $Z = 34$  HASTA  $Z = 20$  OBTENIDOS MEDIANTE EL -  
DETECTOR LEPS.

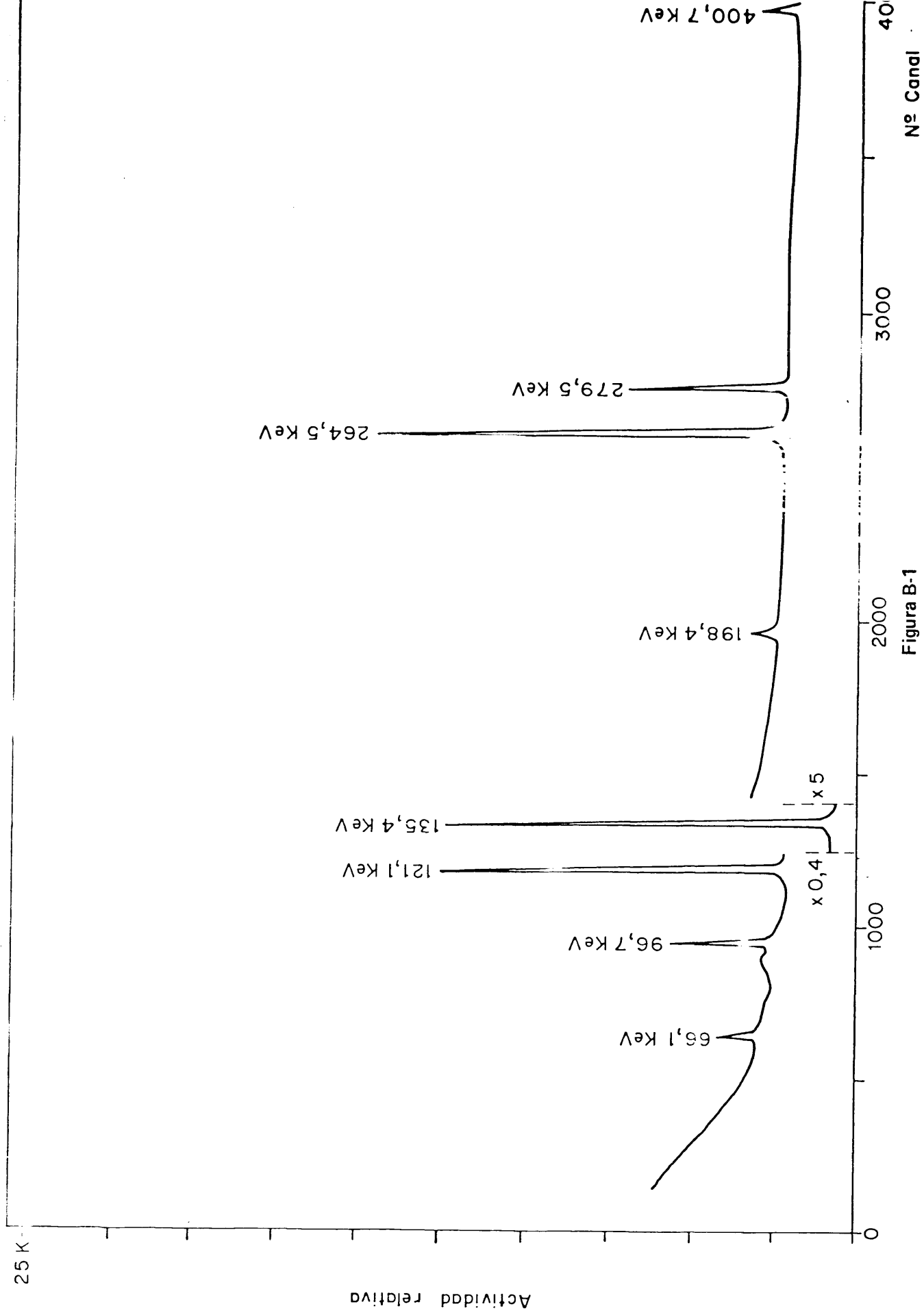


Figura B-1

$Se^{75}$ . Irradiación = 10 h. Desintegración = 39.52 h.



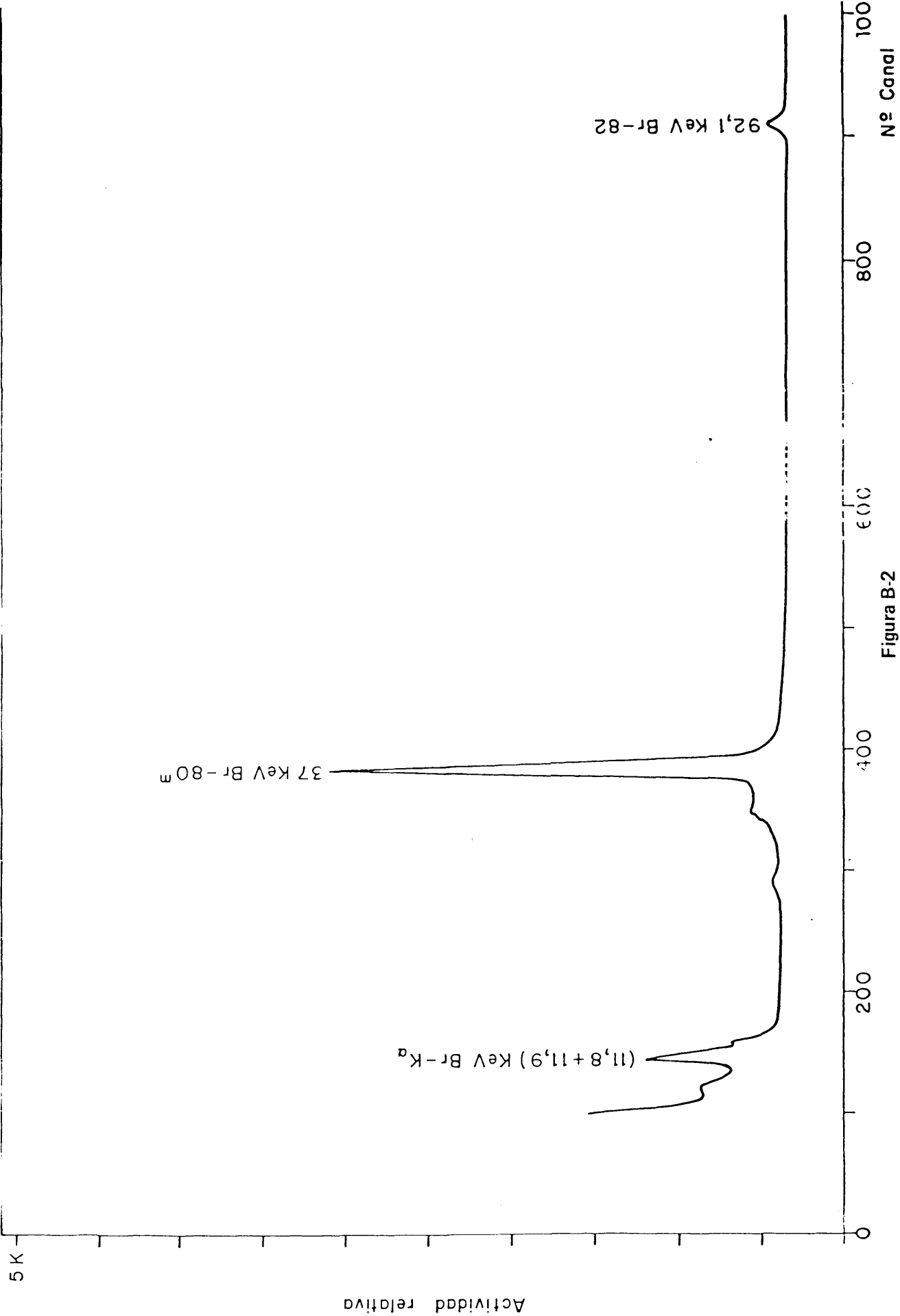


Figura B-2

$\text{Br}^{80\text{m}}$  -  $\text{Br}^{82}$ . Irradiación - 10 h. Desintegración = 20.35 h.

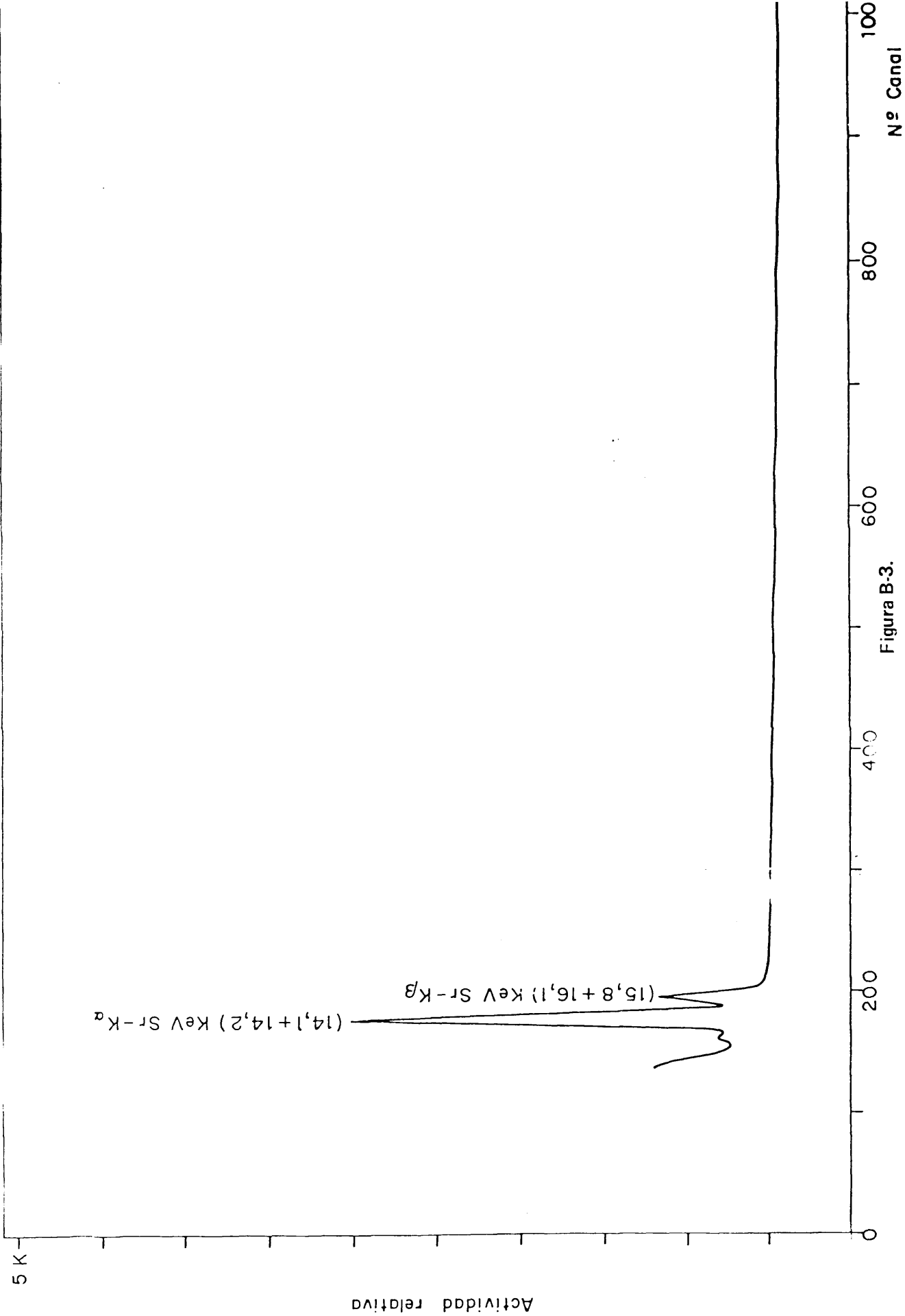


Figura B-3.

$\text{Sr}^{87\text{m}}$ , Irradiación = 10 h. Desintegración = 16.38 h.

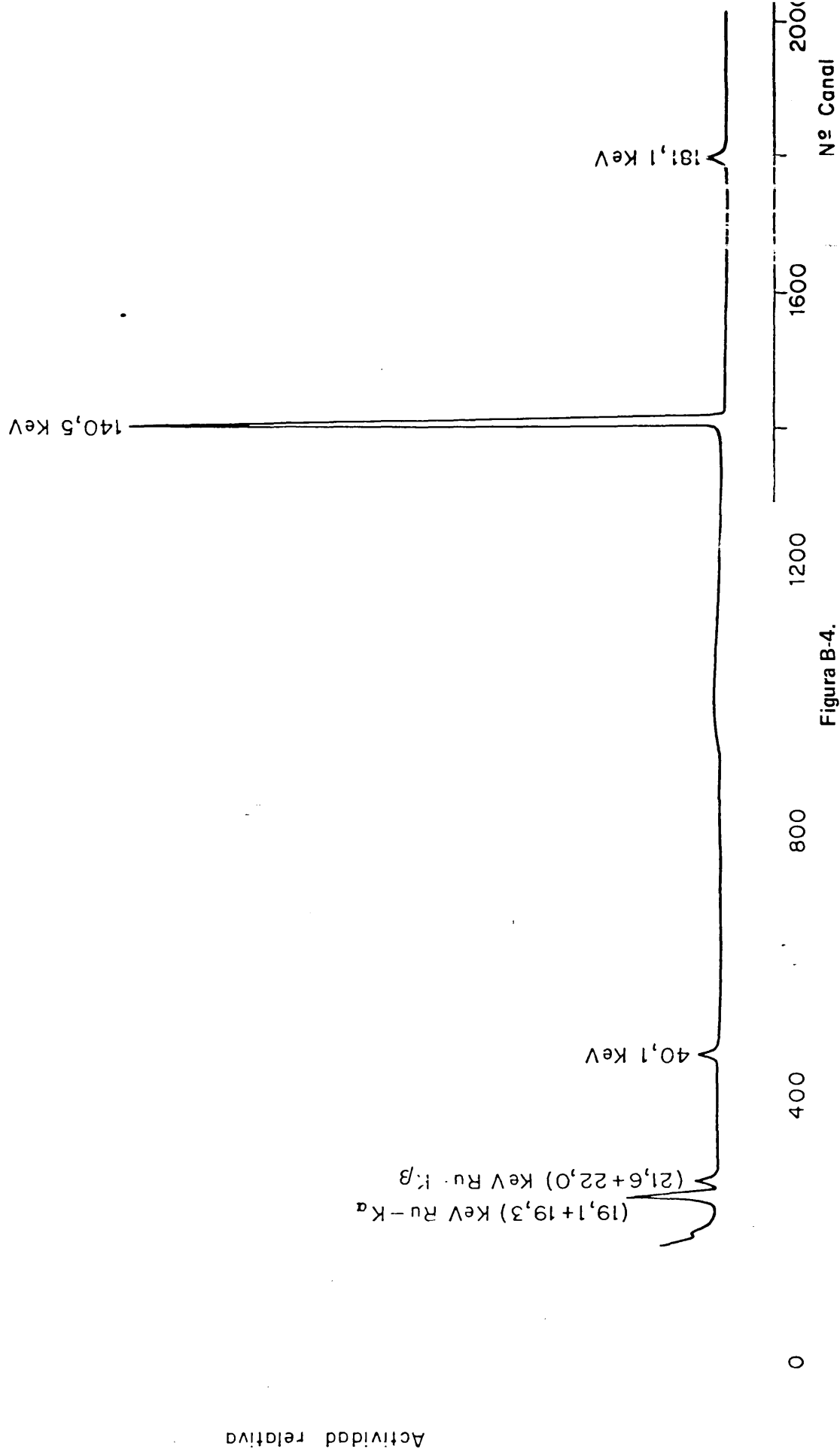


Figura B-4.

$\text{Mo}^{99} - \text{Tc}^{99\text{m}}$ . Irradiación = 10 h. Desintegración = 22.58 h

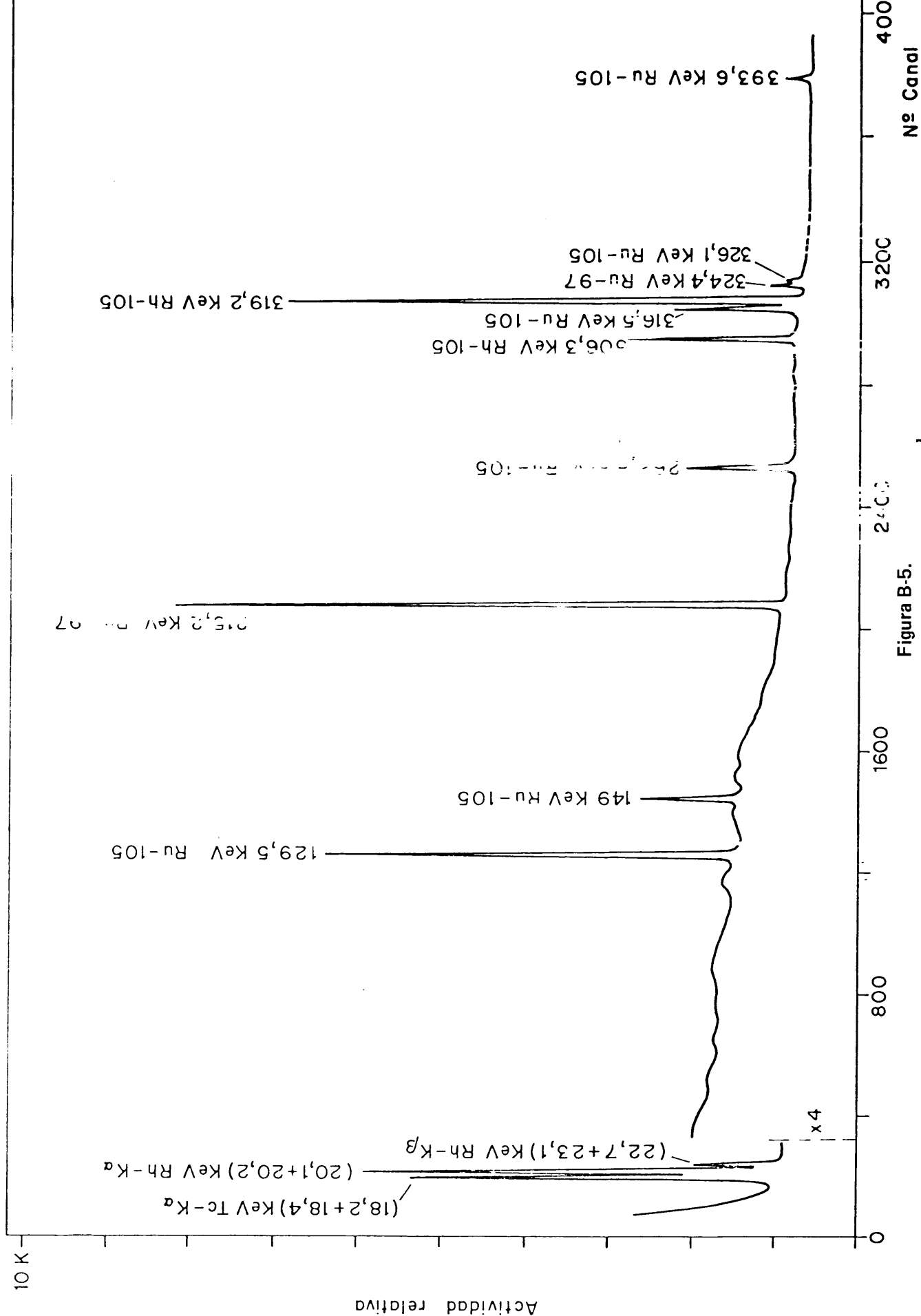
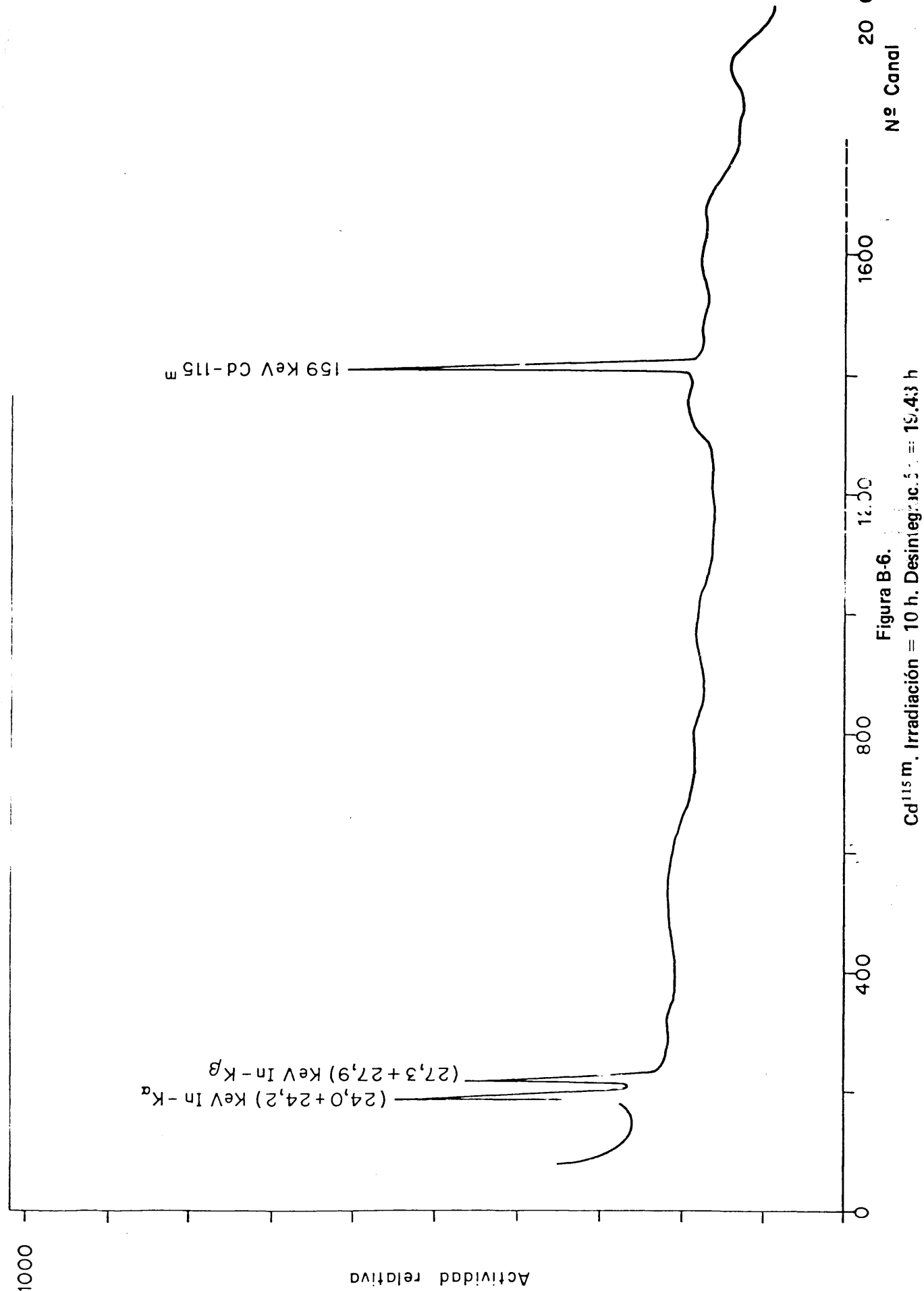


Figura B-5.

$\text{Ru}^{105} - \text{Ru}^{105} - \text{Rh}^{105}$ . Irradiación = 10 h. Desintegración = 2'.17 a.



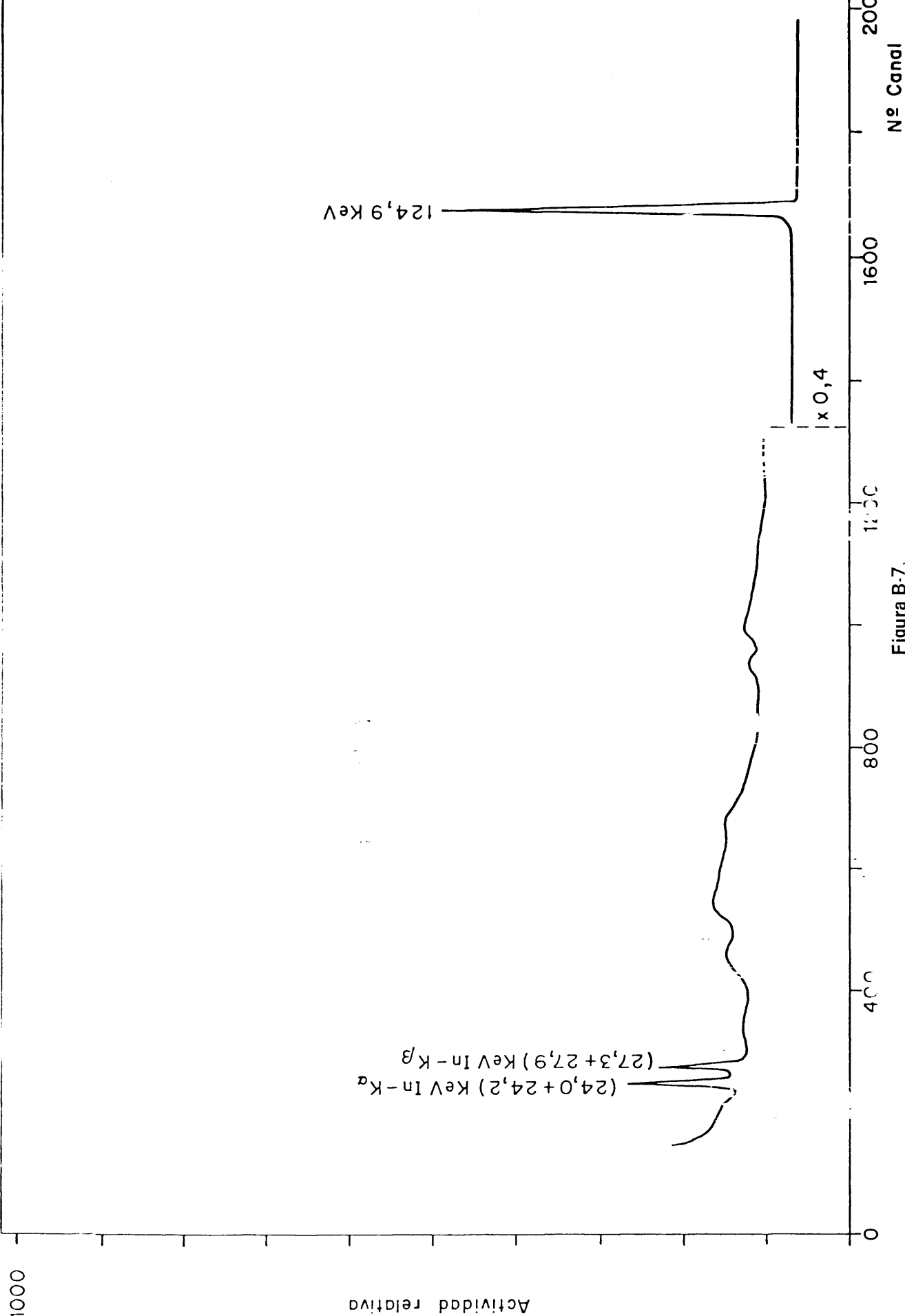


Figura B-7.

$\text{In}^{114m}$ . Irradiación = 10 h. Desintegración = 22.15 h.

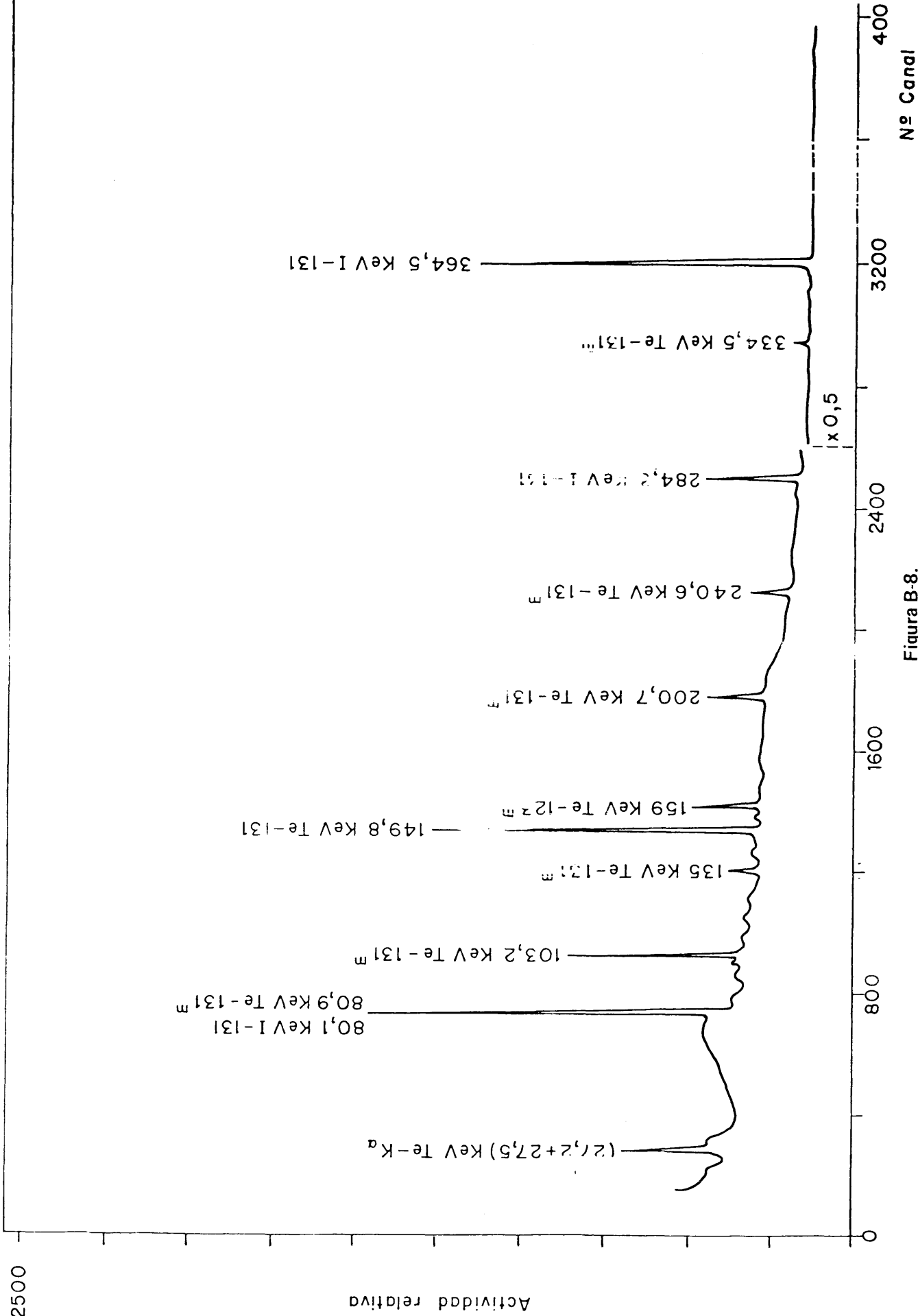


Figura B-8.

$\text{Te}^{123\text{m}} - \text{Te}^{131\text{m}} - \text{Te}^{131} - \text{I}^{131}$ . Irradiación = 10 h. Desintegración = 18.40 h.

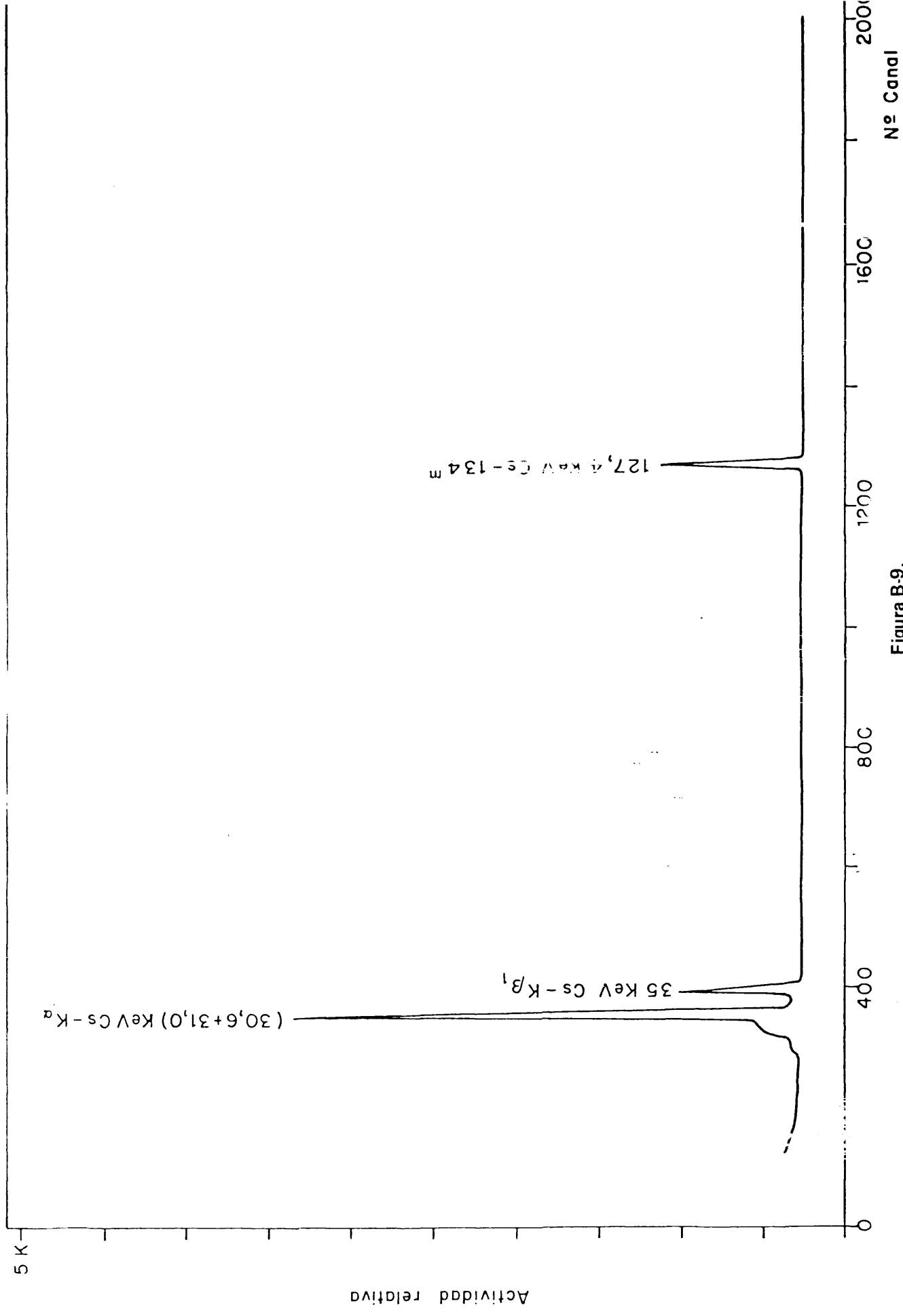


Figura B-9.

Cs<sup>134m</sup>, Irradiación = 10 h. Desintegración = 20.27 h.



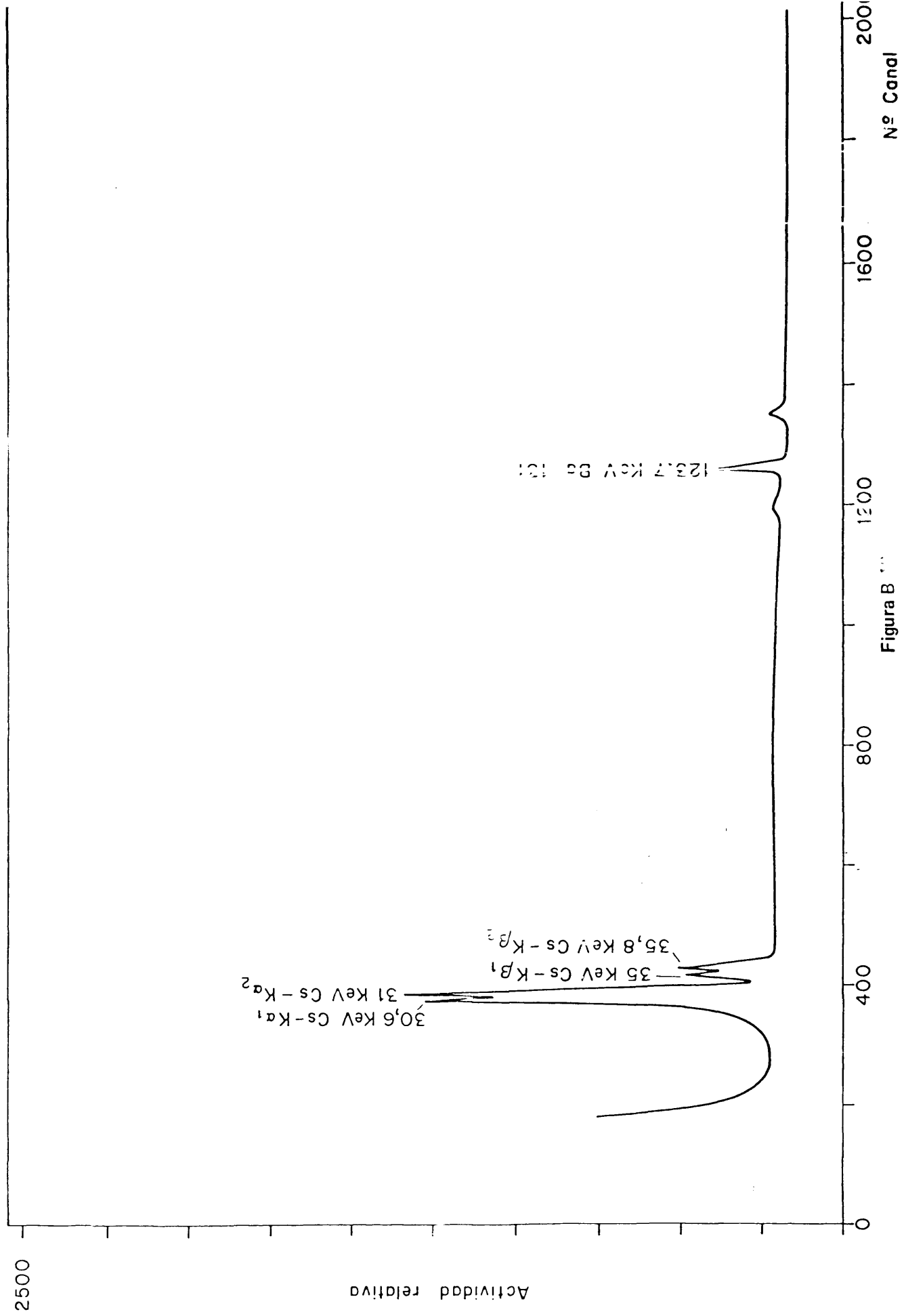


Figura B

Ba<sup>131</sup>. Irradiación = 10 h. Desintegración = 45.16 h.

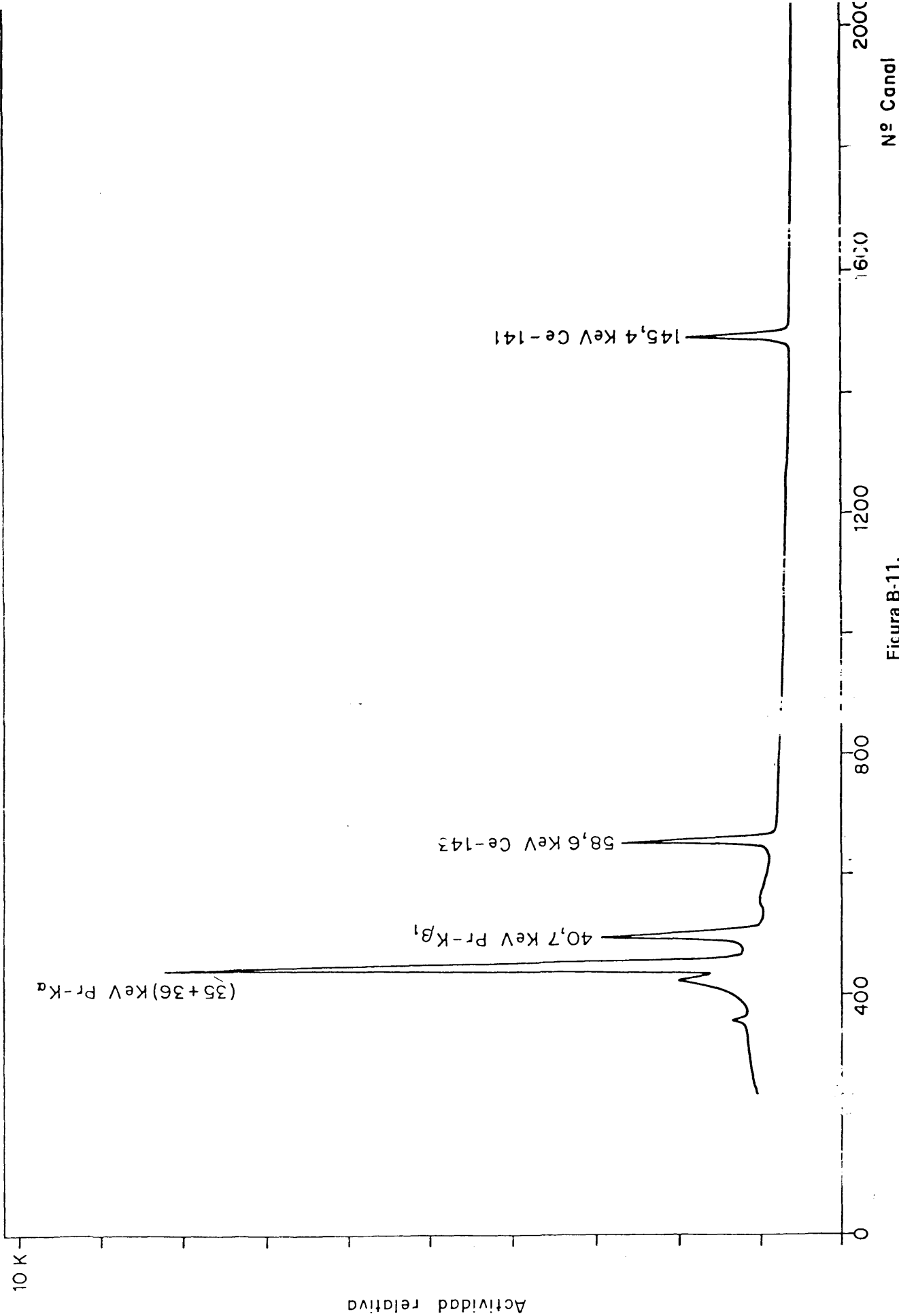


Figura B-11.

$\text{Ce}^{141} - \text{Ce}^{143}$ , Irradiación = 10 h. Desintegración = 39.28 h.

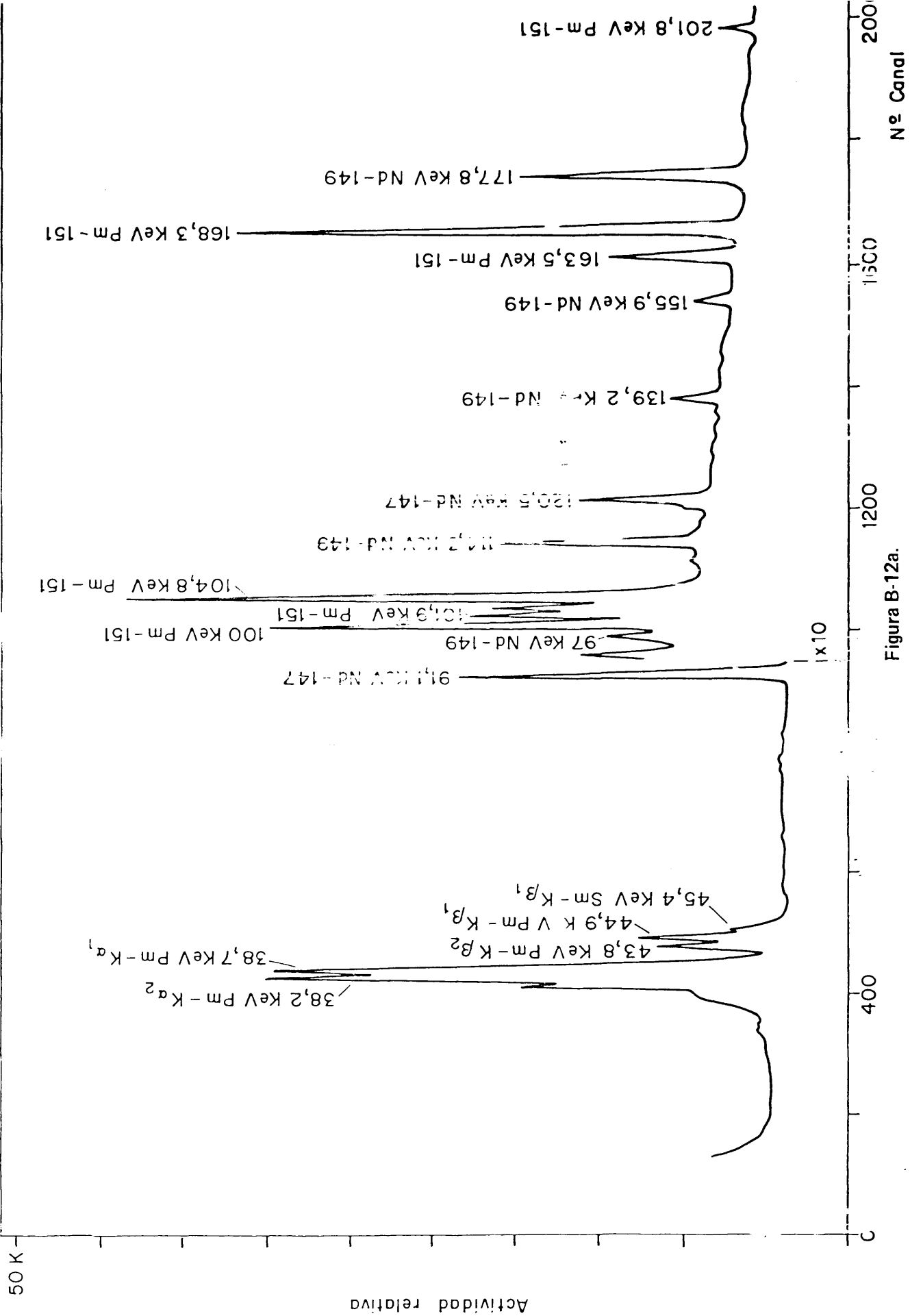


Figura B-12a.

Nd<sup>147</sup> - Nd<sup>149</sup> - Pr<sup>151</sup> Irradiación = 10 h. Desintegración = 18.04 h.

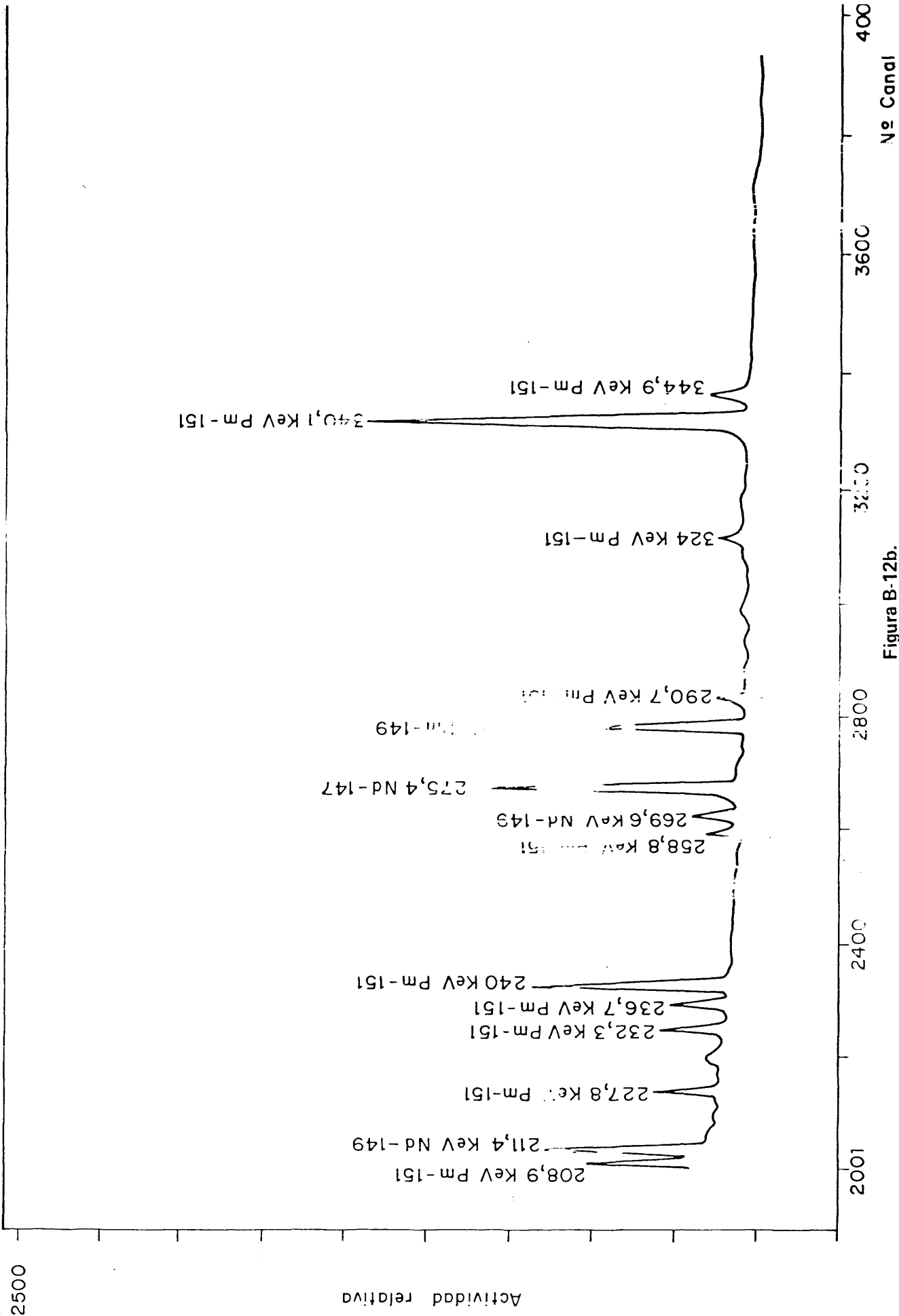


Figura B-12b.

$\text{Nd}^{147} - \text{Nd}^{149} - \text{Pm}^{151} - \text{Pm}^{151}$ , Irradiación = 10 h. Desintegración = 16.04 h.

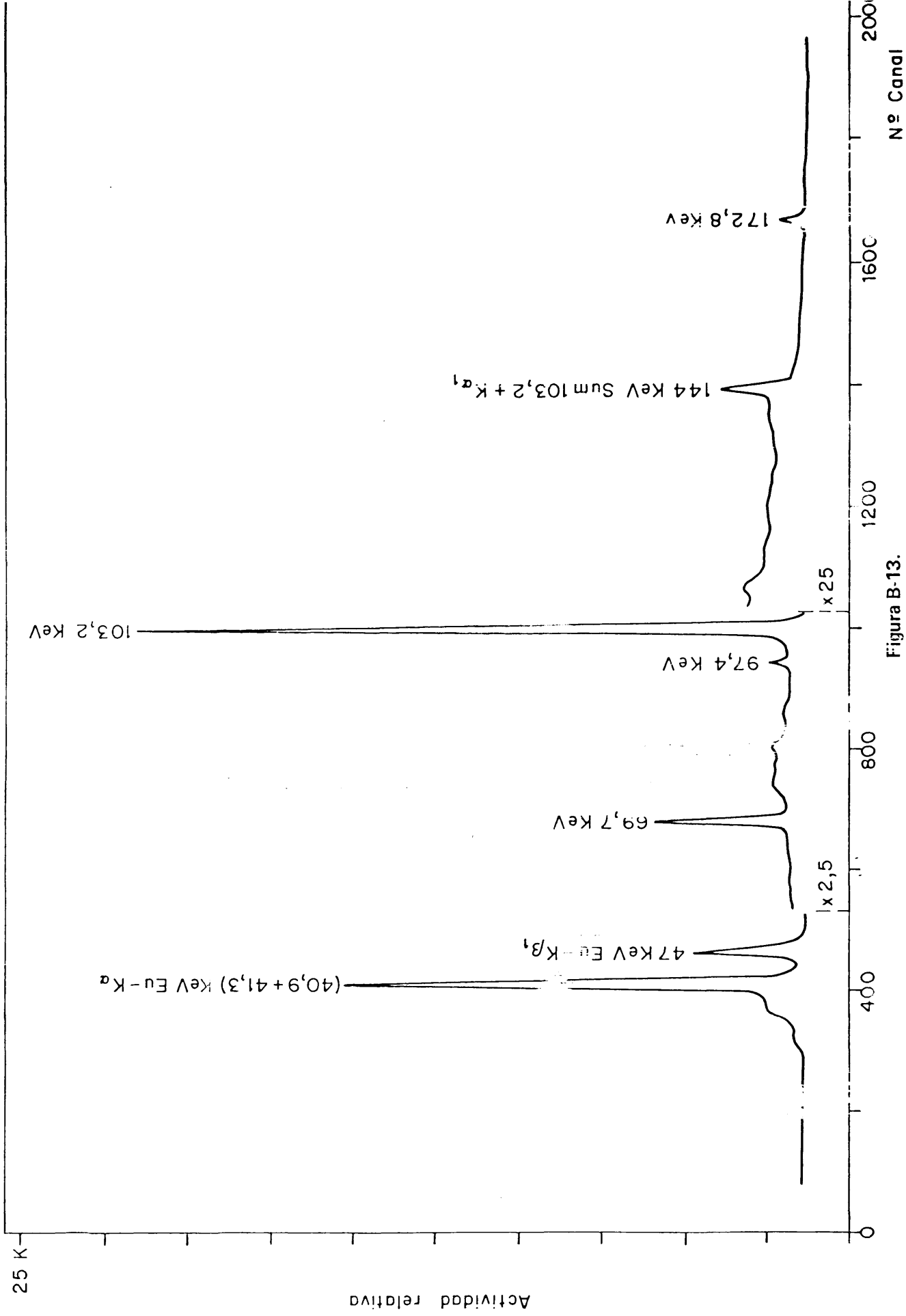


Figura B-13.

$\text{Sm}^{153}$ . Irradiación = 10 h. Desintegración = 22.18 h.

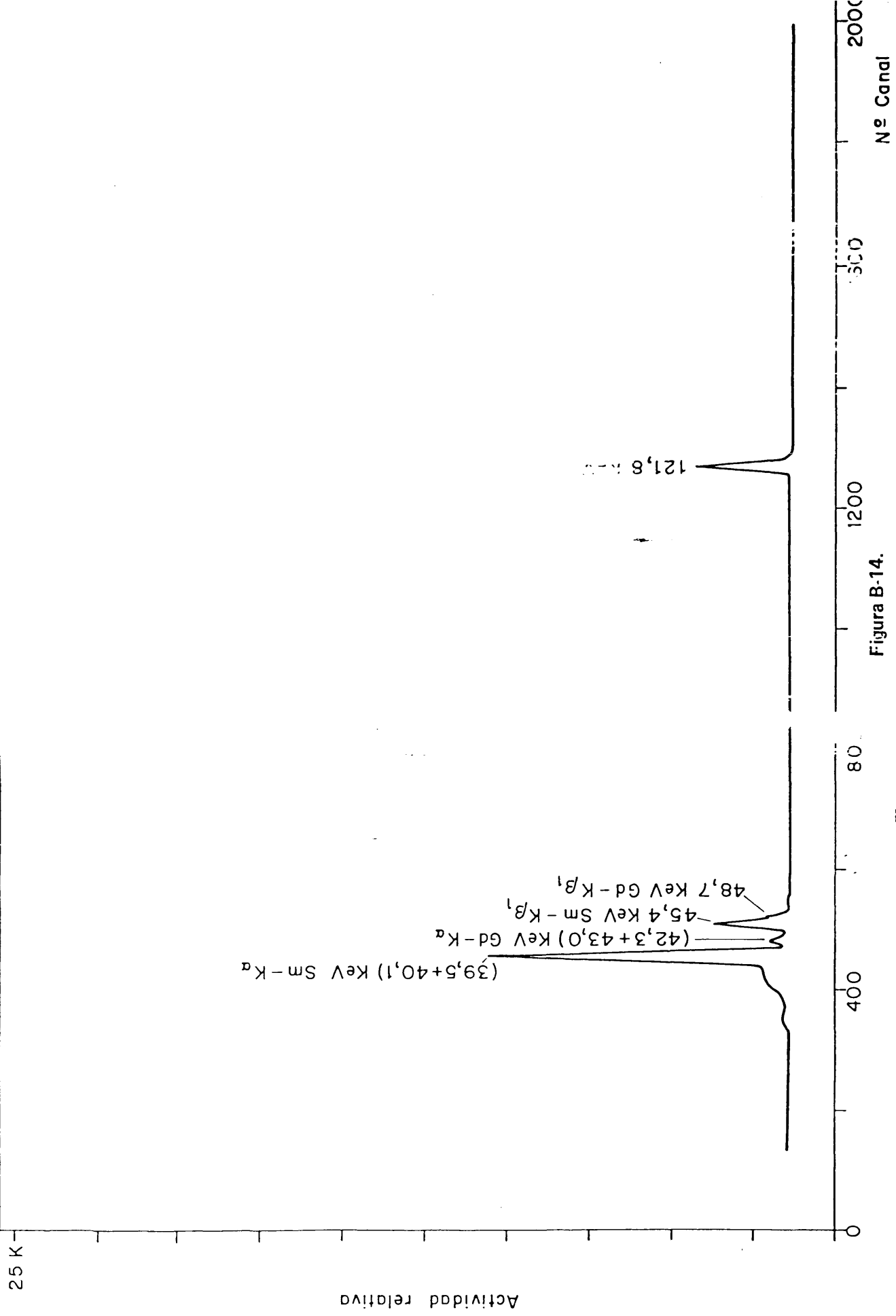


Figura B-14.

Eu<sup>152m</sup> - Eu<sup>152</sup>, irradiación = 10 h. Desintegración = 21.5 h.

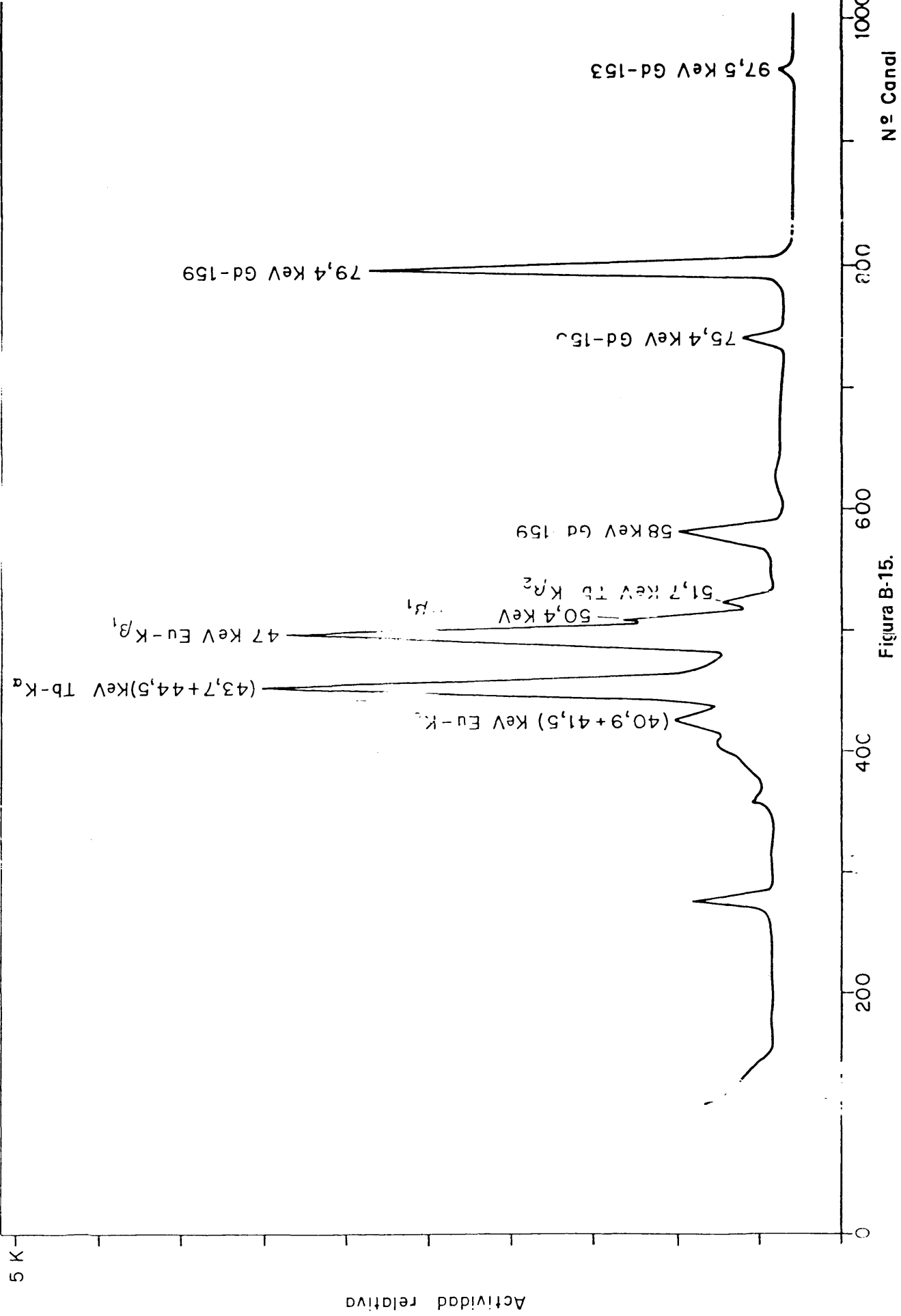


Figura B-15.

Gd<sup>153</sup> - Gd<sup>153</sup> irradiación = 10 h. Desintegración = 17.19 h.

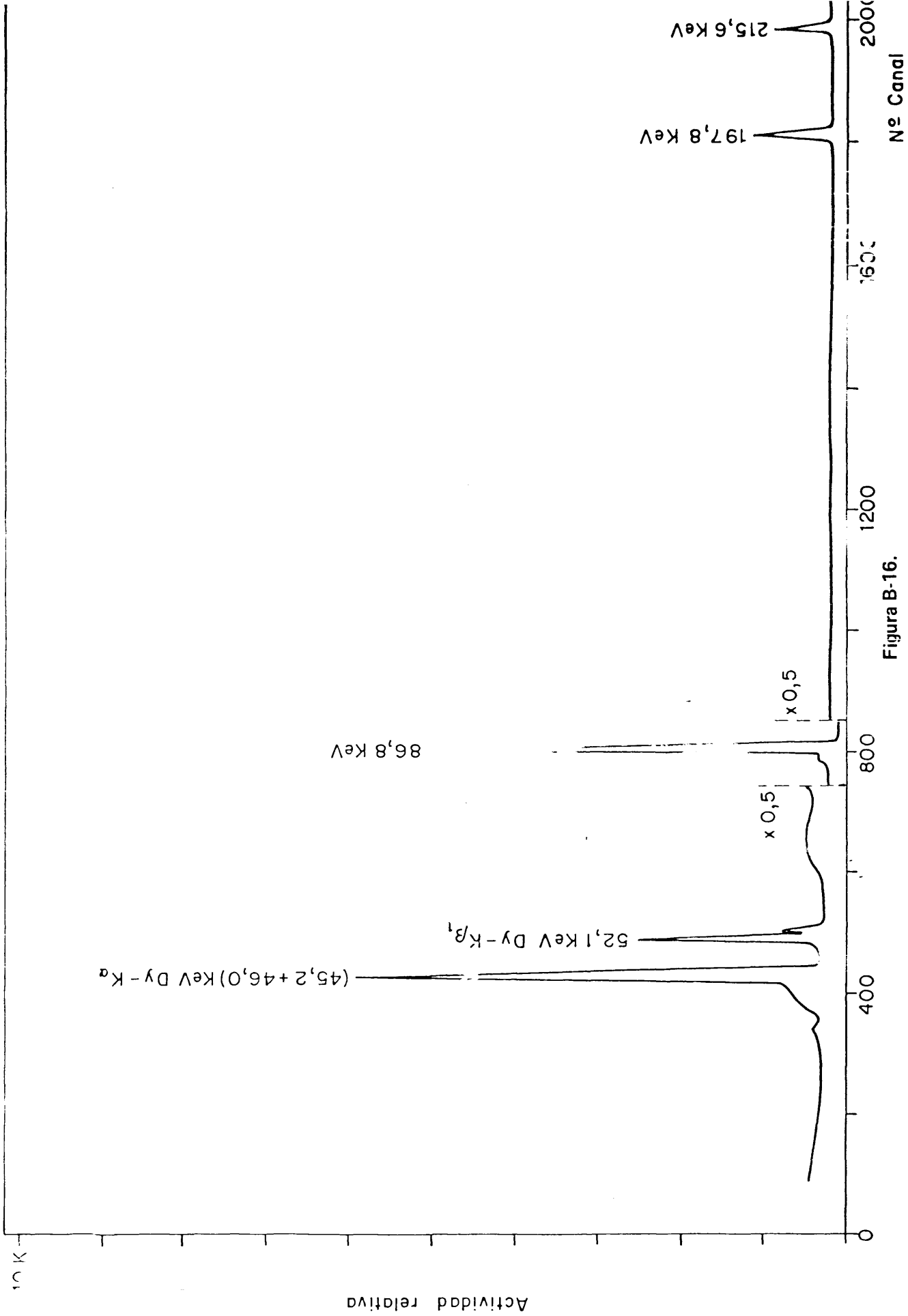


Figura B-16.

Tb<sup>160</sup>. Irradiación = 10 h. Desintegración = 17.10 h.



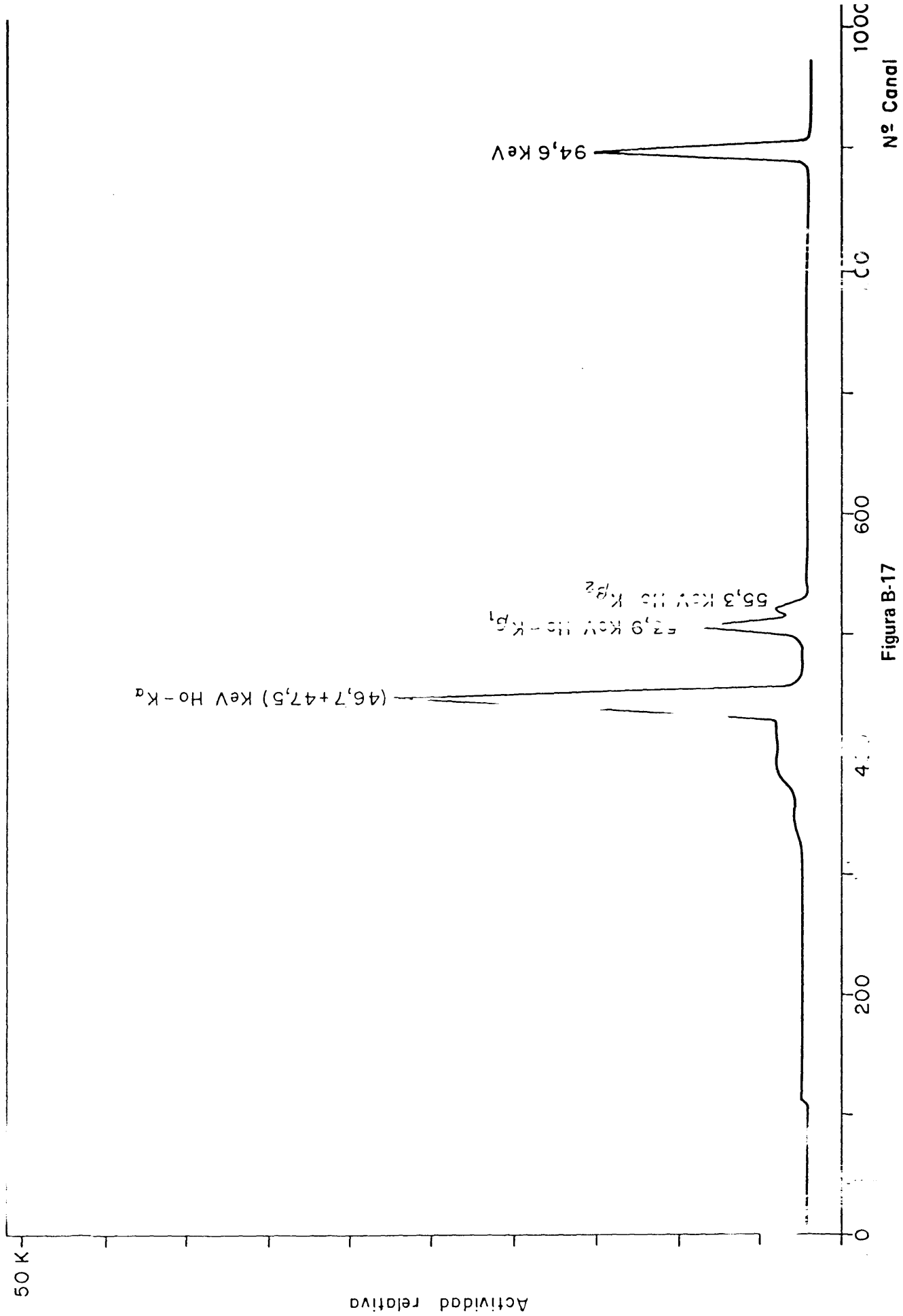


Figura B-17

$Dy^{165}$ , Activación = 10 h. Desintegración = 20.32 h.

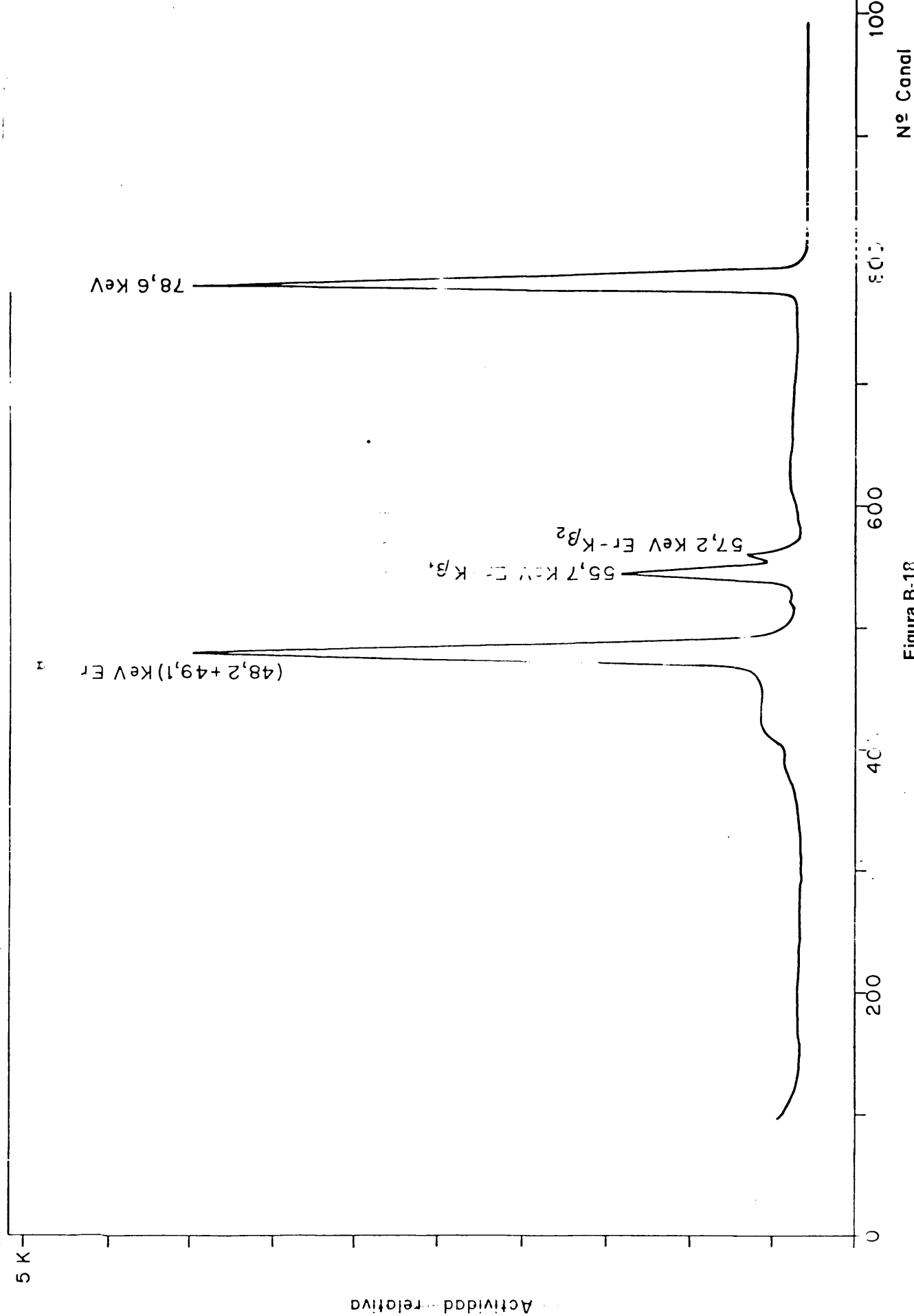


Figura B-18.

$Ho^{166}$ . Irradiación = 10 h. Desintegración = 41.45 h.

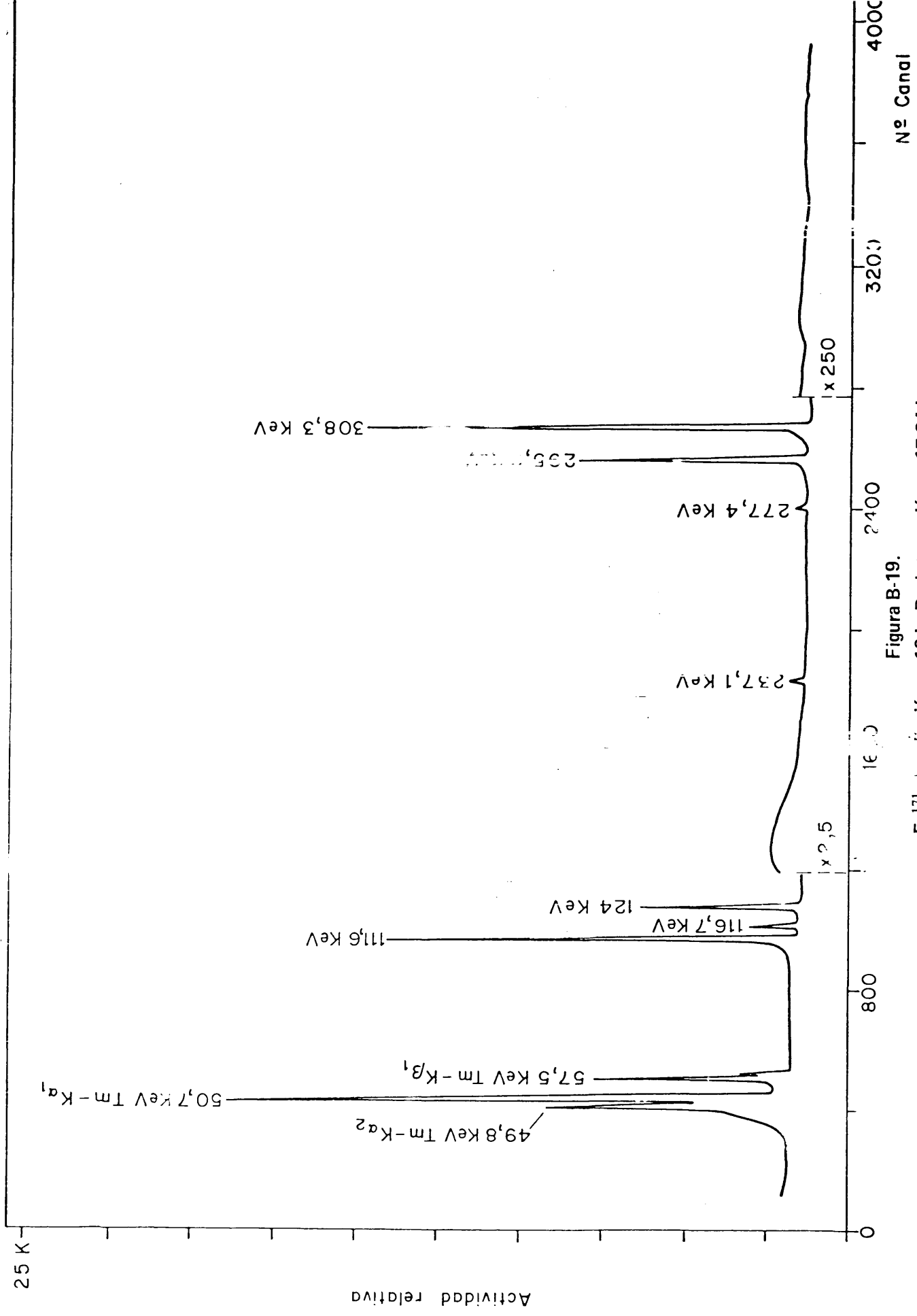


Figura B-19.

Er<sup>171</sup>, irradiación = 10 h. Desintegración = 17.24 h.

25 K

Actividad relativa

84,3 KeV

52,4 KeV  $\gamma$  D -  $K\alpha_1$

51,4 KeV  $\gamma$  B -  $K\alpha_2$

59,4 KeV  $\gamma$  L  $K\beta_1$

61 KeV  $\gamma$  B -  $K\beta_2$

200

400

600

800

1000

Figura B-20.

$Tm^{170}$ . Irradiación = 10 h. Desintegración = 13.10 h.

Nº Canal

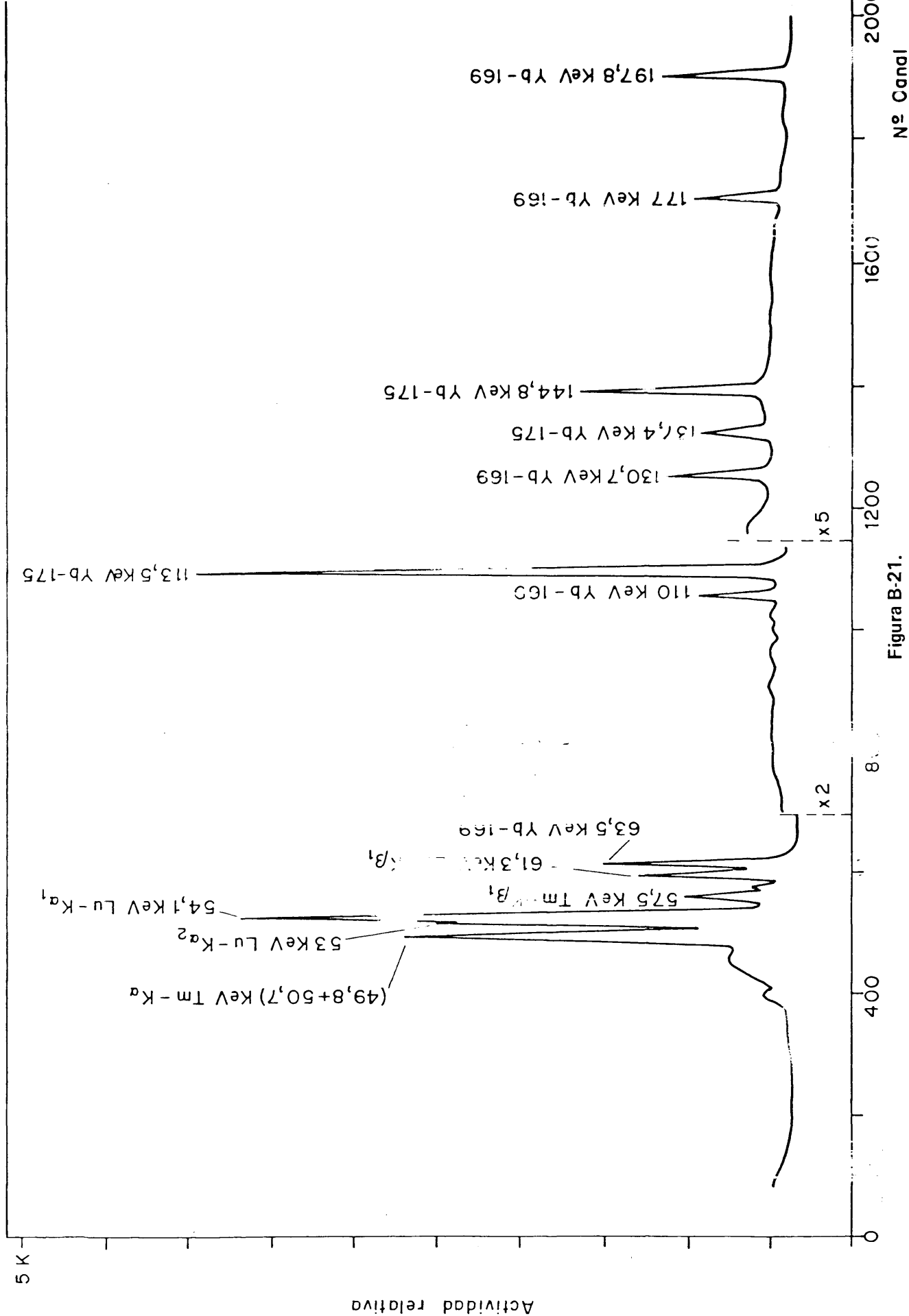


Figura B-21.

Yb<sup>169</sup> - Yb<sup>175</sup>. Irradiación = 10 h. Desintegración = 19.55 h.

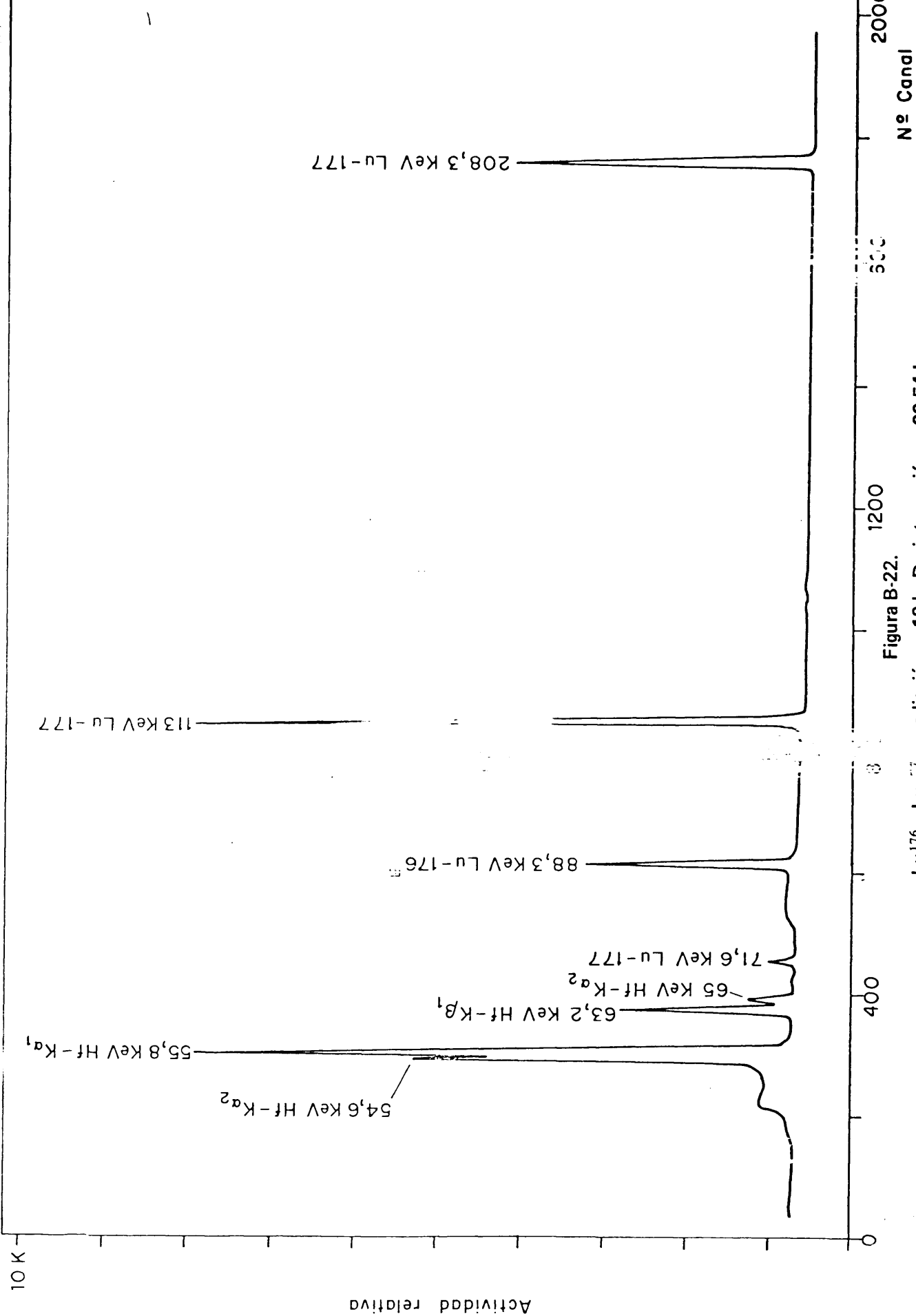
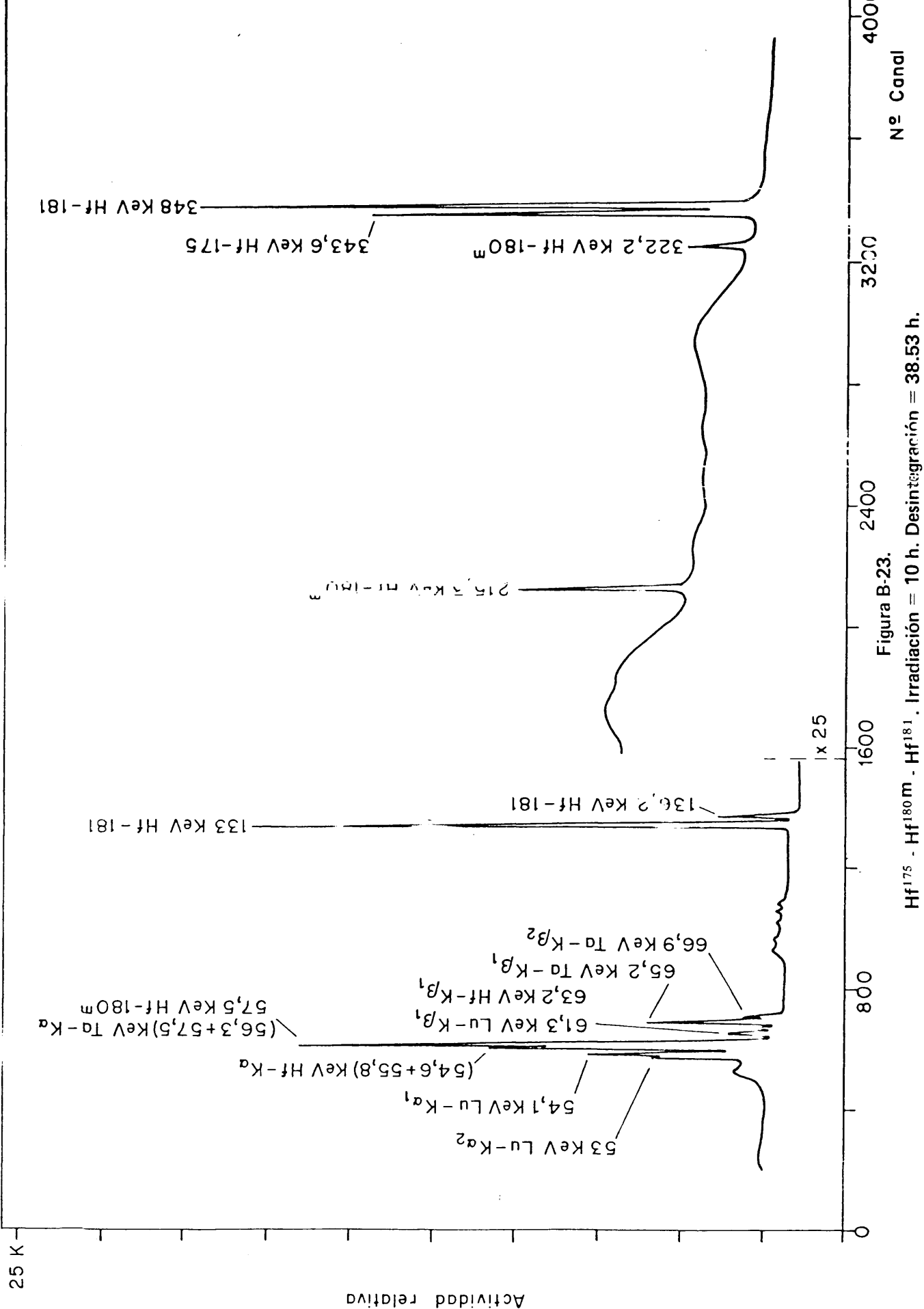


Figura B-22.

Lu<sup>176</sup> - Lu<sup>177</sup>, irradiación = 10 h. Desintegración = 20.54 h.



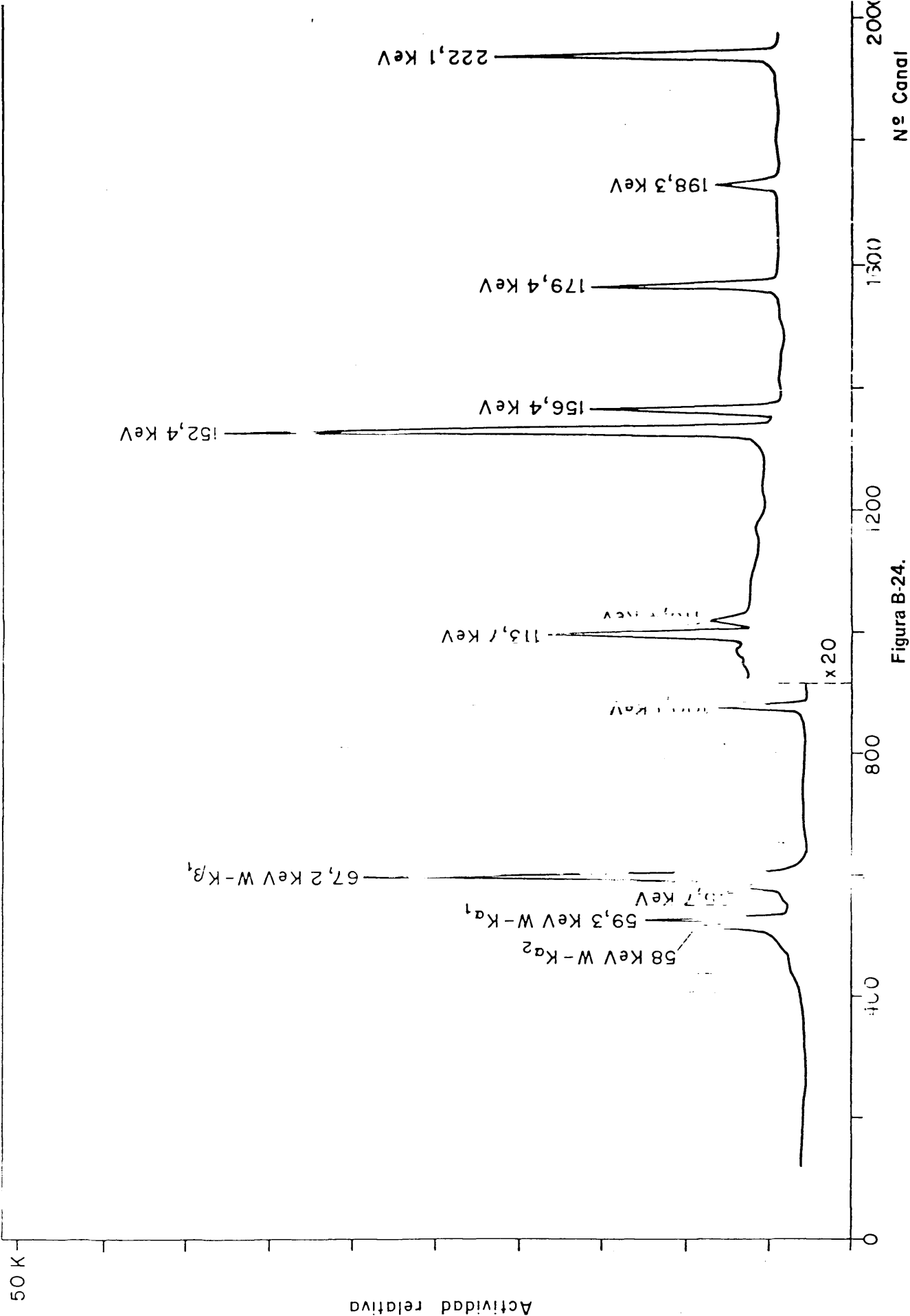


Figura B-24.

Ta<sup>182</sup>, Irradiación = 10 h, Desintegración = 39,35 t.



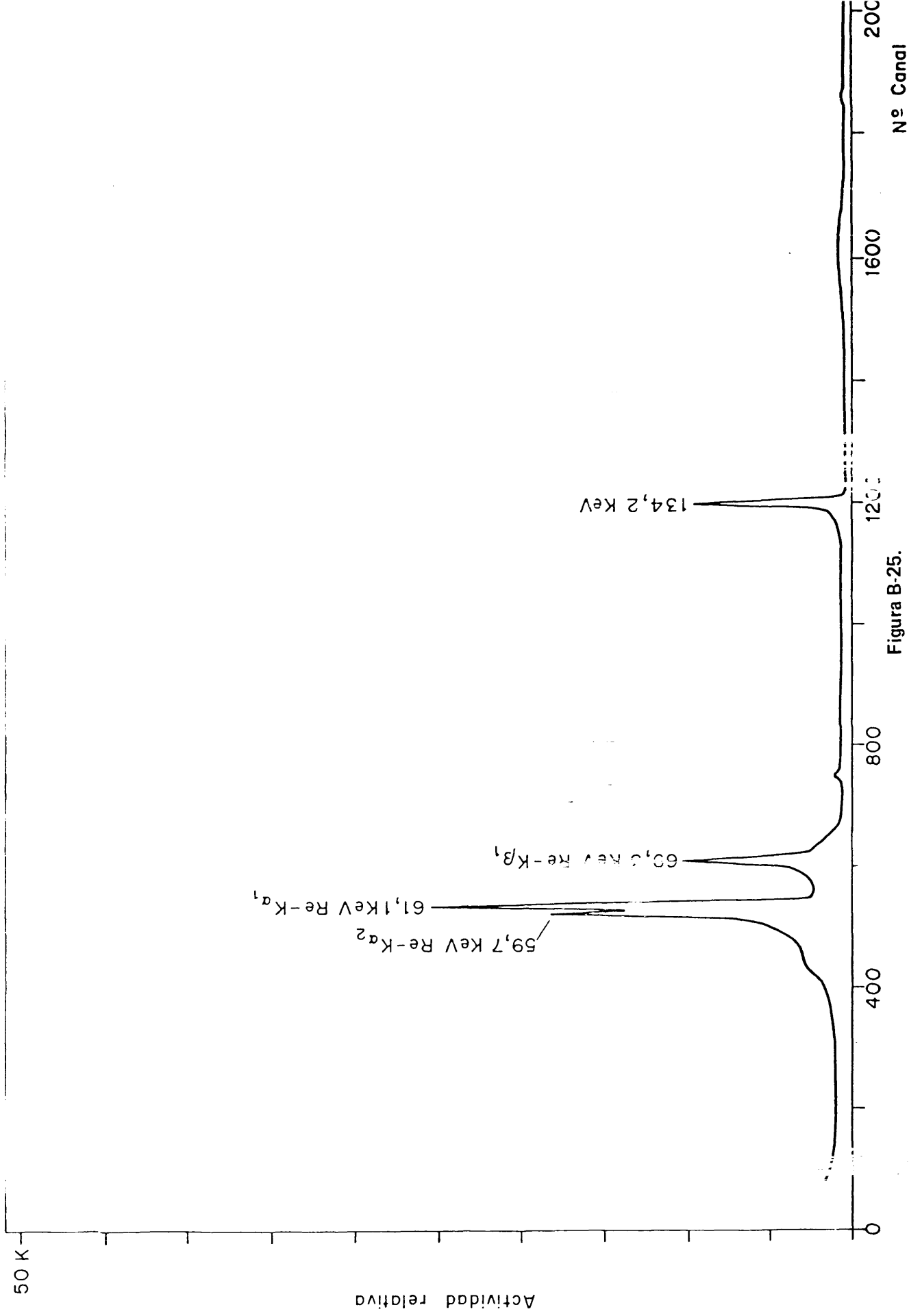


Figura B-25.

W<sup>187</sup>, Irradiación = 10 h. Desintegración = 4 h. 15 h.

Actividad relativa

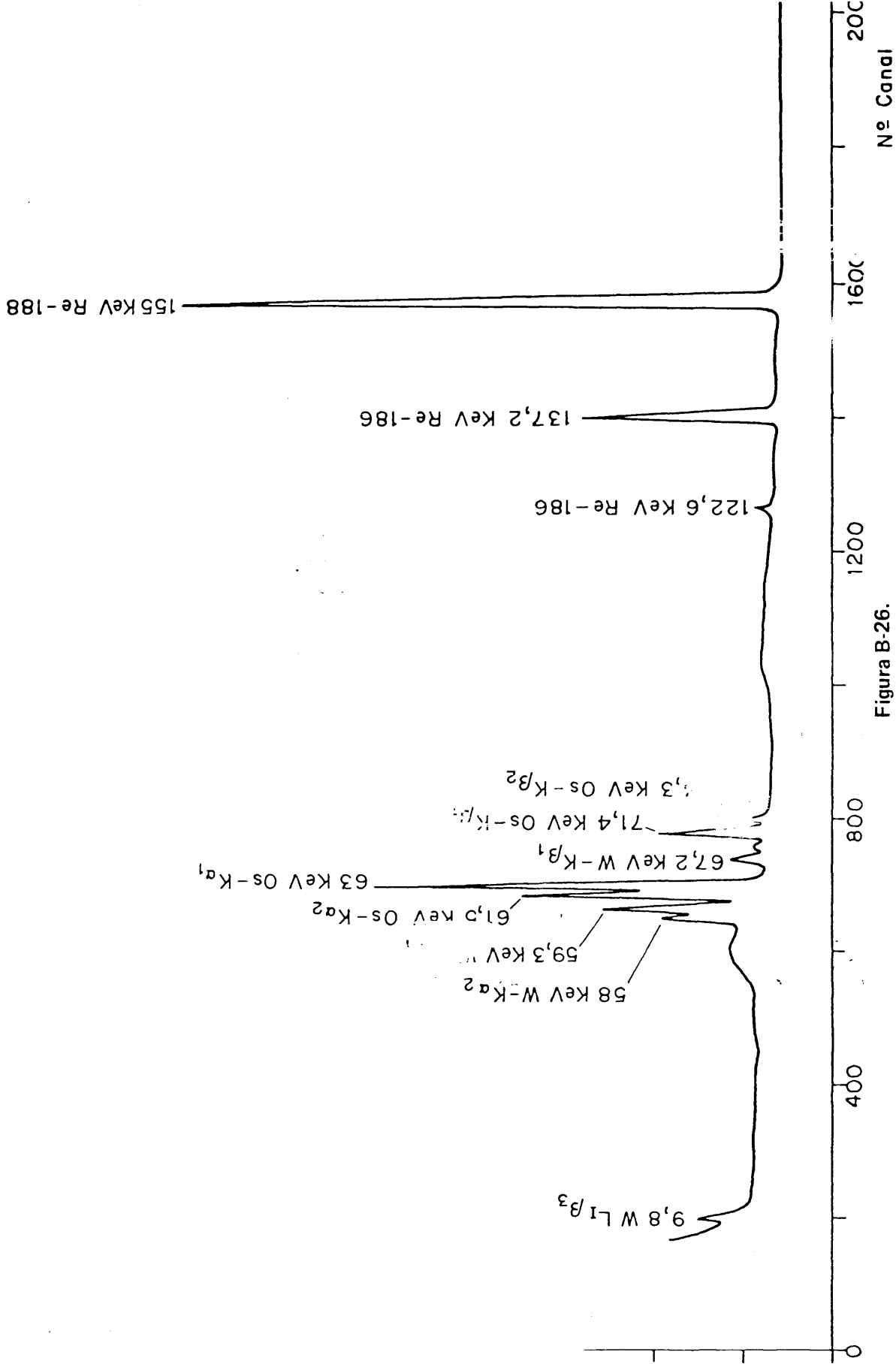


Figura B-26.

Re<sup>186</sup> - Re<sup>188</sup>. Irradiación 10 h. Desintegración = 16.48 h.

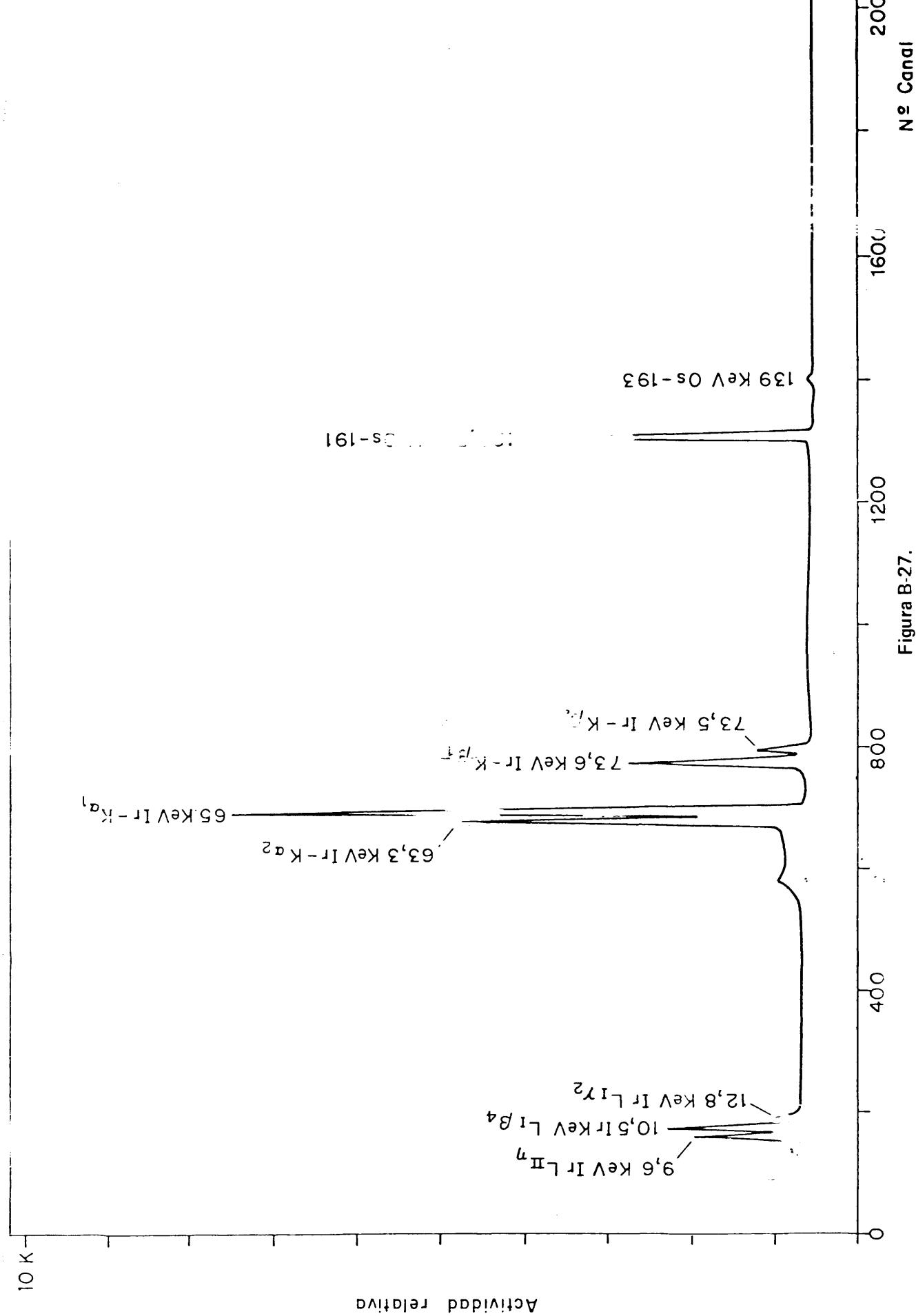
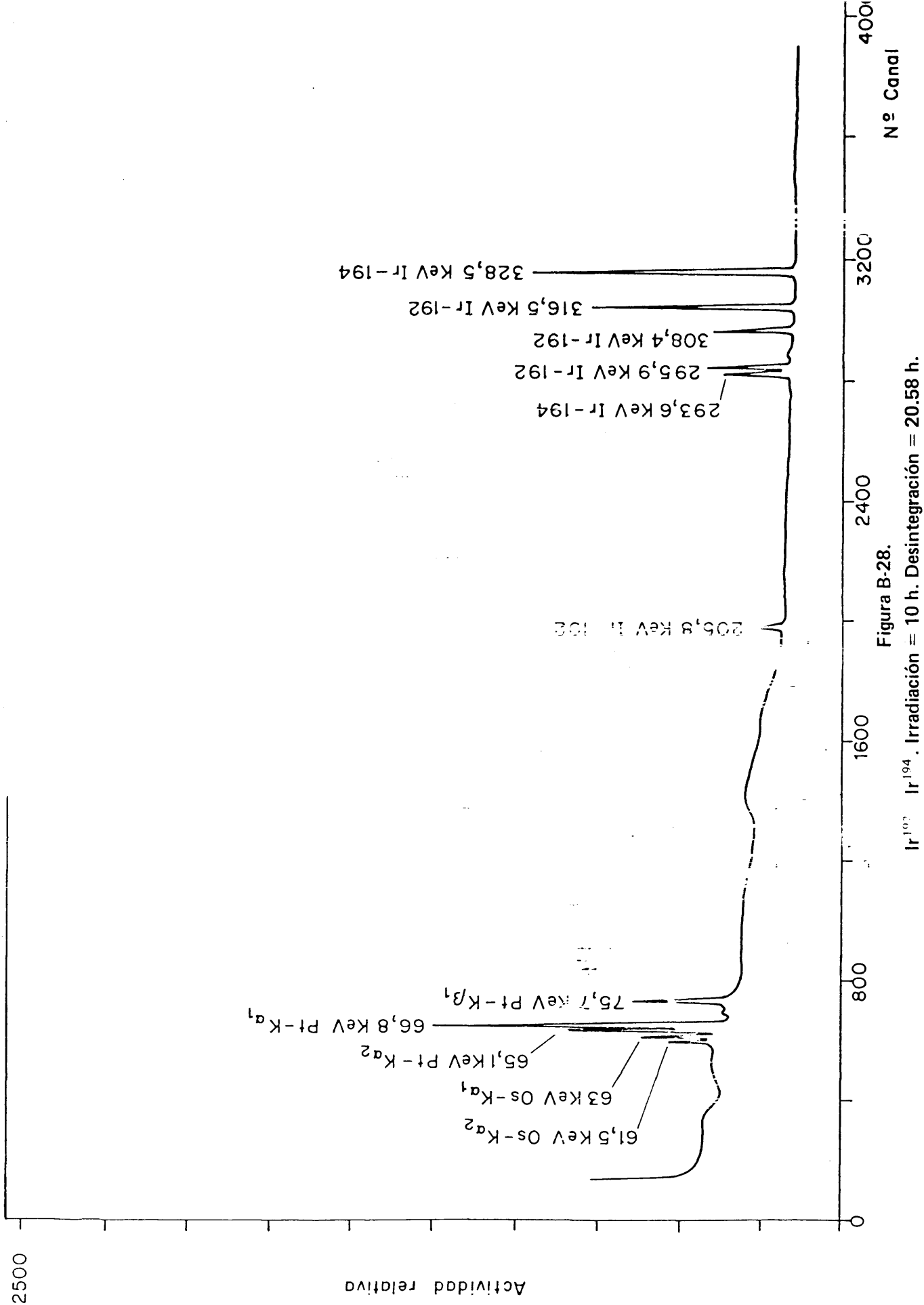


Figura B-27.

Os<sup>191</sup> - Os<sup>193</sup>, Irradiación = 10 h. Desintegración = 183.27 h.



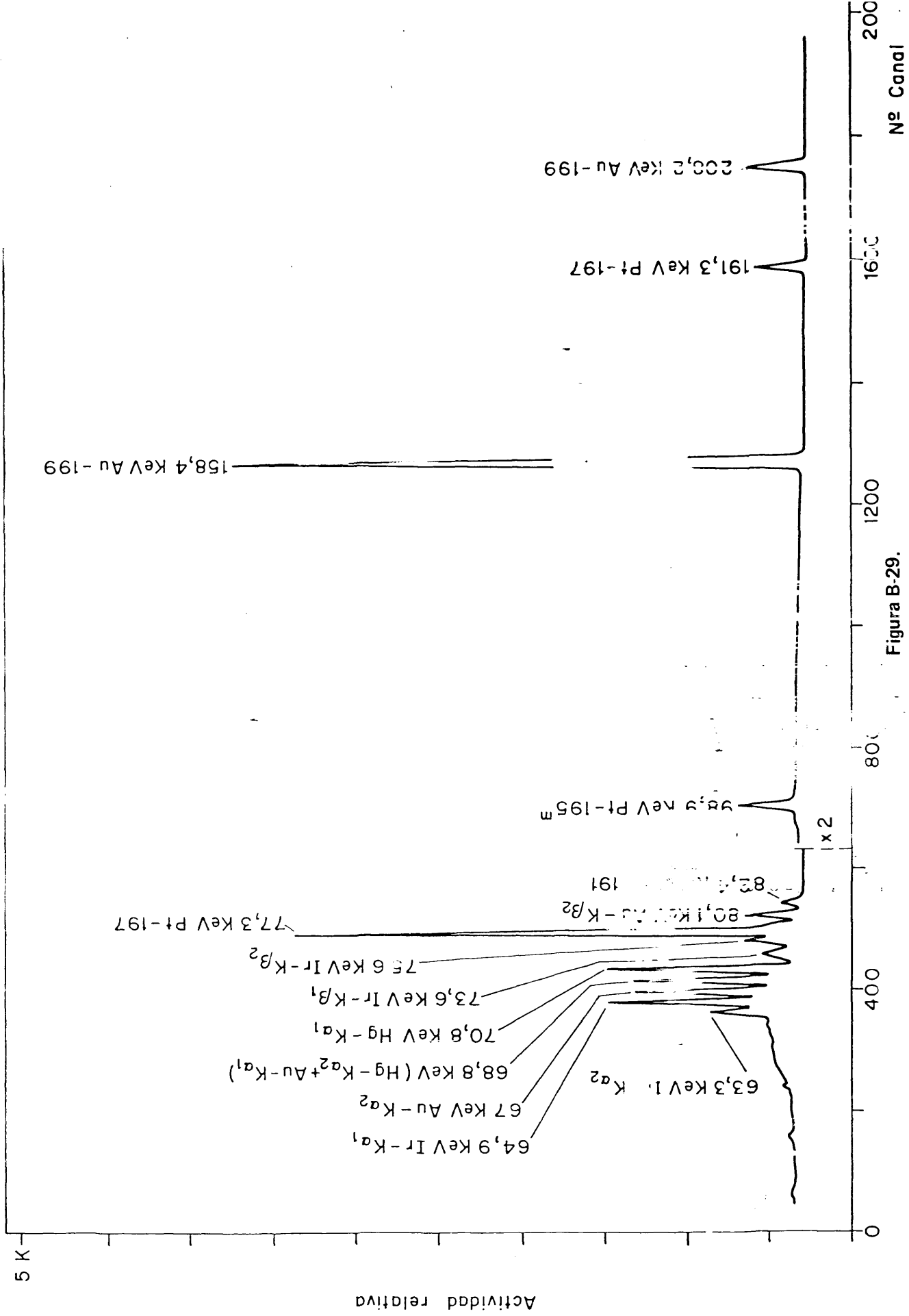


Figura B-29.

Pt<sup>191</sup> - Pt<sup>195m</sup> - Pt<sup>197</sup> - Au<sup>199</sup>. Irradiación = 10 h. Desintegración = 20.58 h.

25 K

Actividad relativa

70,8 keV Hg-K $\alpha_1$

68,9 keV Hg-K $\alpha_2$

80,2 keV Hg-K $\beta_1$

82,4 keV Hg-K $\beta_2$

0

200

400

600

800

1000

Figura B-30.

Au<sup>198</sup>. Irradiación = 10 h. Desintegración = 40.12 h.

Nº Canal

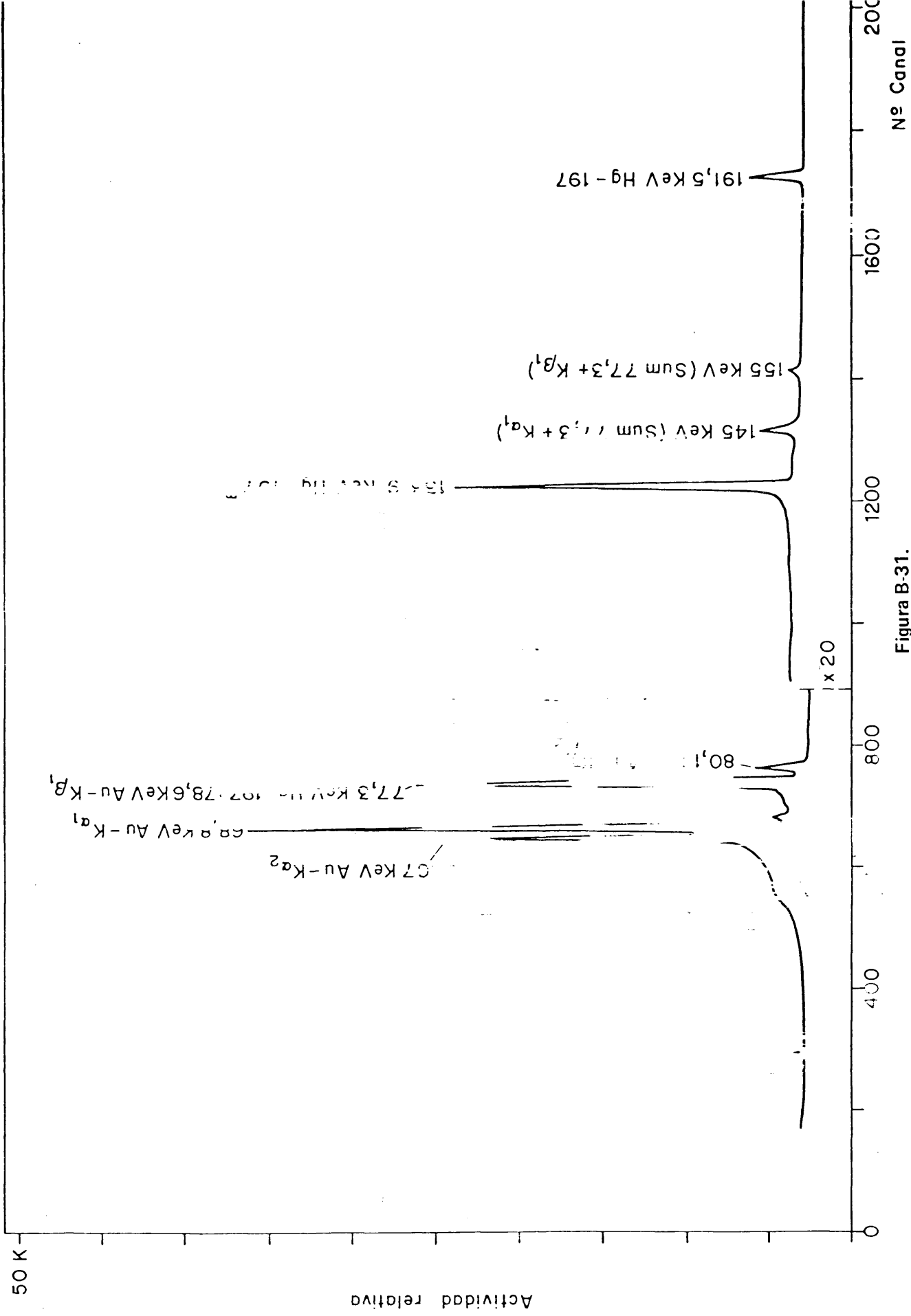


Figura B-31.

Hg<sup>197m</sup> - Hg<sup>187</sup> - Hg<sup>203</sup>. Irradiación = 10 h. Desintegración = 19.25 h.

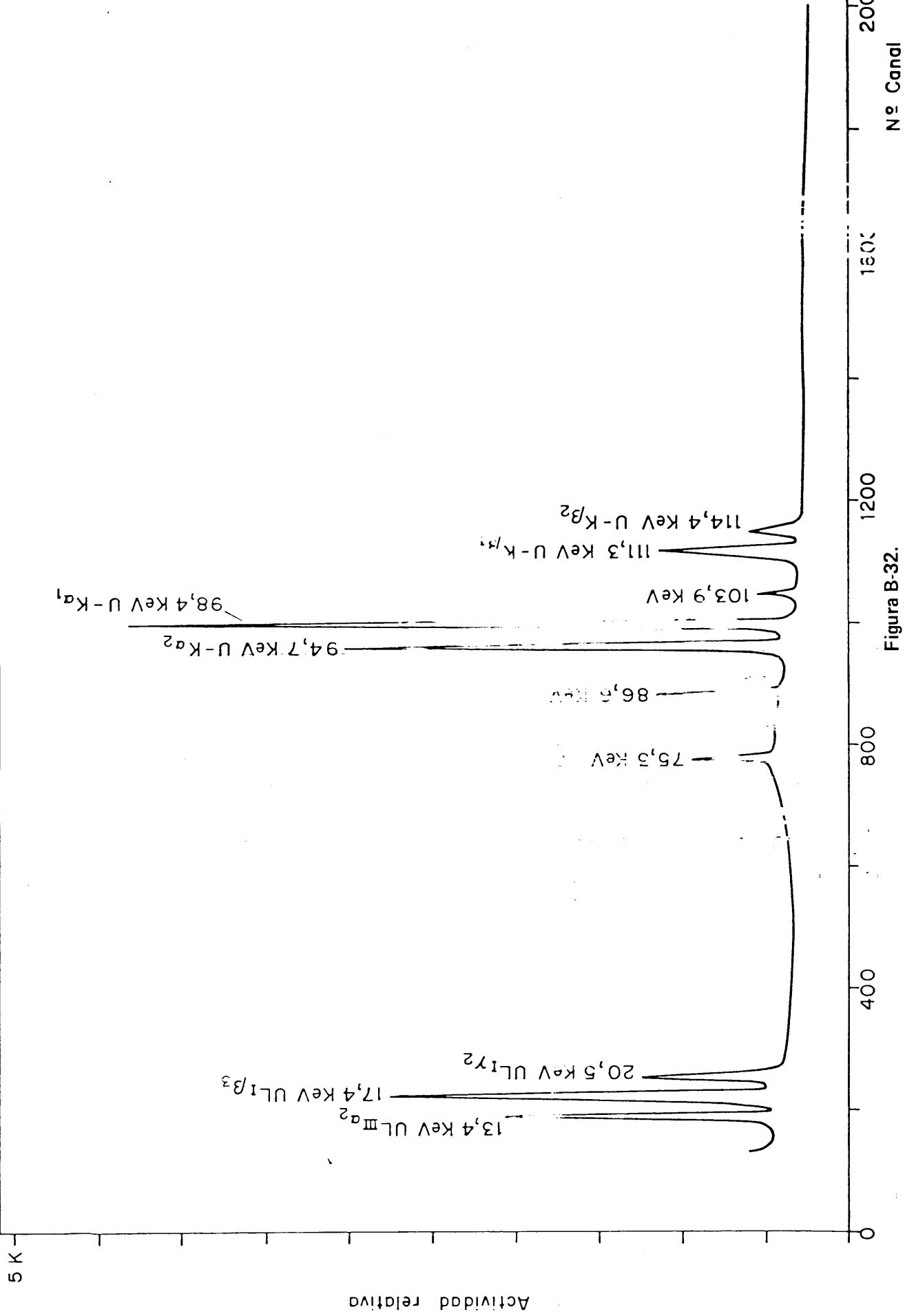


Figura B-32.

Pa<sup>233</sup>. Irradiación — 10 h. Desintegración = 47.27 h.